



Couplage noyau - cortège électronique et excitation du noyau par des lasers intenses

J.-F. Chemin, V. Meot

► To cite this version:

J.-F. Chemin, V. Meot. Couplage noyau - cortège électronique et excitation du noyau par des lasers intenses. École thématique. Ecole Joliot Curie "Noyau, champ et cortège", Maubuisson, (France), du 13-18 septembre 1999 : 18ème session, 1999. cel-00654190

HAL Id: cel-00654190

<https://cel.hal.science/cel-00654190>

Submitted on 21 Dec 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

COUPLAGE NOYAU - CORTEGE ELECTRONIQUE ET EXCITATION DU NOYAU PAR DES LASERS INTENSES

J.F. CHEMIN^{a)} - V. MEOT^{b)}

a) CENBG - BP 120 - Le Haut-Vigneau 33175 GRADIGNAN Cedex

b) CEA/DIF/DPTA/SPN - BP 12 - 91680 BRUYERES-LE-CHATEL

I - INTRODUCTION

Nous proposons dans ce cours d'étudier l'influence du cortège électronique sur les processus d'excitation et de désexcitation du noyau dans les atomes et les ions. Cette influence est la conséquence du couplage des deux parties du système, électronique et nucléaire, par l'interaction électromagnétique que l'on sait décrire depuis longtemps. Les développements nouveaux dans ce domaine résultent des progrès expérimentaux qui permettent aujourd'hui de pouvoir produire en quantité suffisante tous les éléments de la classification périodique dans tous les états de charges, jusqu'à des ions "nus". Il est alors possible de suivre de manière continue, l'évolution de la décroissance d'un système nucléaire en fonction du nombre d'électrons liés au noyau. Ainsi, certains mécanismes de décroissance quelquefois envisagés de longues années auparavant, ont-ils pu être mis récemment en évidence. La première partie de ce cours est consacrée à l'étude de ces phénomènes.

Par ailleurs, les développements spectaculaires des lasers de puissance au cours de la dernière décennie permettent la création en laboratoire de plasmas très chauds, dont l'une des caractéristiques est d'être constitués par des ions très chargés, hors de l'état fondamental, dans lesquels le couplage entre la partie électronique et la partie nucléaire dans un même ion peut induire une excitation du noyau à la suite de la décroissance du système électronique. La deuxième partie du cours est consacrée aux expériences dans ce nouveau domaine.

Au cours du développement des deux parties de ce cours on verra que les dynamiques de la partie électronique, et de la partie nucléaire d'un atome, ou d'un ion, ne peuvent pas être dissociées. Elles doivent au contraire être traitées globalement comme un système pour lequel les deux parties peuvent échanger de l'énergie, un peu à la manière d'un circuit électrique oscillant dans laquelle l'énergie est alternativement stockée dans la partie selfique ou la partie capacitive du système.

II - RELATION ENTRE LES LOIS D'ECHELLES DANS LES SYSTEMES ATOMIQUES ET DANS LES SYSTEMES NUCLEAIRES

II.1 Dimensions relatives

- Système nucléaire

Le rayon des noyaux, supposés sphériques en 1^{ère} approximation, évolue en fonction du nombre de nucléons A selon la relation :

$$r_n = r_0 A^{1/3} \text{ où } r_0 \sim 1.2 \text{ fm} \quad (2.1)$$

- *Système électronique*

Pour un système hydrogénoïde de numéro atomique Z , la probabilité de présence d'un électron à une distance r du centre du noyau s'exprime à partir de la fonction d'onde qui décrit l'état électronique, $\phi_{n,l,m}(r)$.

$$|\phi_{n,l,m}(r)|^2 = |\phi_{nl}(r) Y_{ml}(\theta, \varphi)|^2 \quad (2.2)$$

Les fonctions $\phi_{nl}(r)$ et $Y_{lm}(\theta, \varphi)$ représentent respectivement la partie radiale et la partie angulaire de la fonction d'onde pour un champ central.

Dans le cas général, ϕ_{nl} s'écrit en fonction des polynômes de Laguerre L_n^1 :

$$\phi_{n,l} = -\frac{2}{n^2} \sqrt{\frac{(n-l-1)!}{[(n+l)!]^3}} e^{-\frac{Zr}{na_0}} \left(\frac{2Zr}{na_0}\right)^l L_{n+l}^{2l+1}\left(\frac{2Zr}{na_0}\right) \quad (2.3)$$

La valeur moyenne de \bar{r} pour une orbitale électronique (n,l) est :

$$\bar{r} = \frac{1}{2} [3n^2 - l(l+1)] \times \frac{a_0}{Z} \quad (2.4)$$

où a_0 est le rayon de Bohr de l'atome d'hydrogène : $a_0 = \frac{\hbar^2}{m_e e^2} = 5.3 \cdot 10^{-9} \text{ cm}$; \hbar est la

constante de Planck, m_e et e sont respectivement la masse et la charge de l'électron.

Pour des états s , $l = 0$, la probabilité de présence de l'électron en fonction de la distance r au centre du noyau s'amortit exponentiellement.

$$|\phi_{nl}|^2 \propto e^{-\frac{2Zr}{na_0}} \quad (2.5)$$

La comparaison des relations (2.1) (2.4) (2.5) montre que le recouvrement du système électronique avec le noyau augmente avec le numéro atomique et décroît avec le nombre quantique n . Il apparaît donc évident que les perturbations engendrées par le cortège électronique sur les propriétés nucléaires sont plus faciles à mettre en évidence dans des noyaux lourds en considérant les électrons les plus proches du noyau à savoir les électrons K et L. Ces conclusions sont peu affectées par les effets relativistes qui ne sont pas pris en compte dans les relations ci-dessus.

II.2 Niveaux d'énergie électronique et nucléaire

- *Système électronique*

Pour un système hydrogénoïde, en négligeant les effets relativistes, les niveaux d'énergie du spectre discret d'un électron dans un champ coulombien s'obtiennent à partir de l'équation de Schrödinger.

$$E_n = -\frac{m_e Z^2 e^4}{2\hbar^2 n^2 \left(1 + \frac{m_e}{M}\right)} = -\frac{13,6}{n^2} Z^2 \text{ (eV)} \quad (2.6)$$

Dans l'état 1s, cette énergie évolue en fonction du numéro atomique entre 13.6 eV et 100 keV. Une description relativiste du système ne modifie pas de manière sensible ce domaine de variation. L'énergie totale de l'électron dans un système hydrogénoïde est alors obtenue à partir de l'équation de Dirac.

$$E_e = m_e c^2 \left\{ 1 - \left[1 + \left(\frac{Z\alpha}{n - |\kappa| + \sqrt{\kappa^2 - (Z\alpha)^2}} \right)^{-1/2} \right] \right\} \quad (2.7)$$

α est la constante de structure fine. L'énergie dépend alors directement du moment angulaire total j à travers le nombre quantique relativiste $\kappa = j + \frac{1}{2}$

Dans le cas général, l'énergie des électrons dans un atome ou dans un ion ne peut pas être obtenue de manière analytique en raison de l'interaction entre les différents électrons du système. Les méthodes habituelles d'approximation faisant intervenir un champ self-consistant, Hartree-Fock, Dirac-Fock, Multiconfiguration Dirac-Fock, sont alors utilisées pour déterminer les fonctions d'onde des états électroniques et leur énergie [1].

- Système nucléaire

Dans un modèle de particules indépendantes, le calcul des niveaux d'énergie d'un nucléon dans un potentiel harmonique donne pour valeur :

$$E_N = \left(N + \frac{3}{2}\right) \hbar \omega_0 \text{ avec } \hbar \omega_0 \sim 50 A^{-1/3} \text{ (MeV)}$$

Contrairement à ce qui passe pour le système électronique, où les énergies réelles sont proches de celles fournies par (2.6), le couplage des nucléons dans le noyau et les modes d'excitations collectifs qui en résultent entraînent une grande dispersion des énergies d'excitation du noyau. A titre indicatif, on recense plus de 400 (2000) états excités localisés à moins de 50 keV (de 100 keV) au-dessus de l'état fondamental sur l'ensemble des noyaux connus. Le premier niveau excité de plus basse énergie connu se situe à $3,5 \pm 0,5$ eV dans ^{229}Th alors que le premier niveau excité dans O^{16} se situe à 6 MeV. Cette grande dispersion des énergies d'excitation des états nucléaires permet d'envisager des atomes pour lesquels le système nucléaire et le système électronique sont en résonance. Nous reviendrons sur ce point aux chapitres V et VI.

II.3 Comparaison des durées de vie relatives des états excités du cortège et du noyau

Un état atomique excité retourne vers l'état fondamental soit par émission de photons, soit par des transitions non radiatives encore appelées Auger ou Coster-Kronig lorsque les électrons mis en jeu appartiennent à la même couche. La constante de temps associée au taux de remplissage d'une lacune dans une couche donnée est appelée durée de vie du trou. A cette durée de vie est associée une largeur en énergie de l'état excité Γ_a qui est la somme des

largeurs partielles de désexcitation radiative Γ_r et non radiative Γ_{nr} . Les transitions radiatives dominent lors de la désexcitation des trous dans les couches profondes des atomes moyens et lourds. Le rendement de fluorescence ω correspond au rapport $\frac{\Gamma_a}{\Gamma_a + \Gamma_{nr}}$. Par exemple, pour un trou dans la couche K d'un atome $Z = 50$, $\omega_K = 0.875$.

Les transitions radiatives dans les systèmes atomiques sont essentiellement des transitions dipolaires électriques E1. En utilisant des fonctions d'onde hydrogénoïdes non relativistes pour décrire les états électroniques initial n , et final n' , le taux de transitions dipolaires d'un état n' vers un état n est donné en fonction de l'énergie de la transition $E_{n'n}$ en eV et de la force d'oscillateur $f_{n'n}$ [2].

$$A_{n'n} = 4,3 \cdot 10^7 (E_{n'n})^2 f_{n'n} (\text{s}^{-1})$$

La durée de vie d'un trou τ_n est donnée par $\tau_n = \frac{1}{\sum_{n' > n} A_{n'n}}$

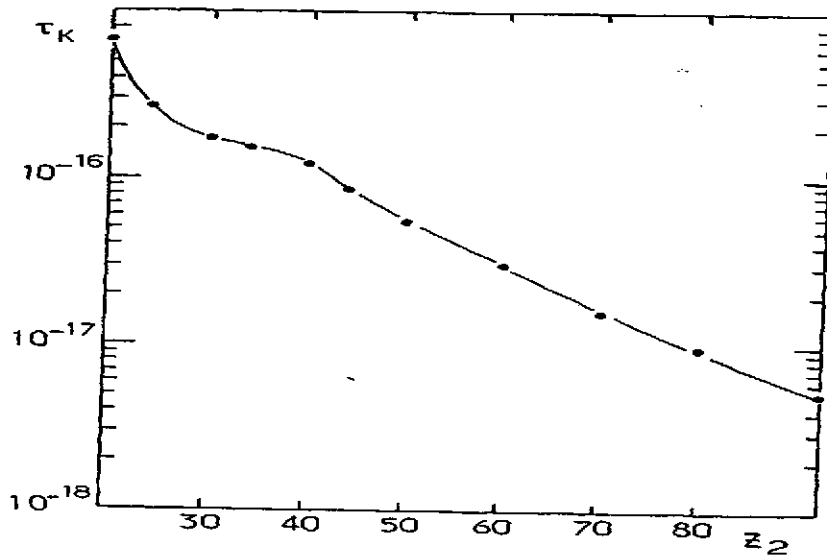


Figure 1
Durée de vie d'une lacune en couche K dans un atome en fonction du numéro atomique [3]

La figure 1 montre la variation de la durée de vie d'un trou dans la couche K en fonction du numéro atomique. Ici le calcul tient compte des effets relativistes et des transitions non radiatives. La largeur en énergie de l'état excité, $\Gamma_K = \hbar/\tau_K$, varie à peu près comme Z^4 . Pour un atome $Z = 50$ on obtient $\Gamma \sim 10$ eV soit une durée de vie de l'état excité $1s$, $\tau_K = 6 \cdot 10^{-17}$ s.

Les transitions M1 et E2 interviennent également dans la désexcitation des systèmes atomiques. Néanmoins, elles n'ont réellement d'importance sur la vie moyenne d'un état excité que si des transitions E1 sont interdites par les règles de sélections. Pour la transition $2s \rightarrow 1s$ par exemple, la désexcitation par M1 entre alors en compétition avec une désexcitation par émission de 2 photons E1.

La durée de vie d'une lacune est une des caractéristiques en temps du système atomique. Un autre temps caractéristique qui intervient fréquemment pour décrire les collisions ion-atome est donné par $t_r = \hbar/E^b$ où E^b est l'énergie de liaison de l'électron. Ce temps est de l'ordre de grandeur de la période d'un électron sur l'orbite de Bohr correspondante. Il correspond aussi au temps qui est nécessaire à un électron pour adapter son mouvement à une perturbation du potentiel coulombien qui le lie au noyau. Si la perturbation du potentiel se fait pendant un temps très supérieur à t_r , la perturbation est adiabatique. A l'inverse, elle est soudaine, comme dans le cas d'une désintégration β du noyau.

La durée de vie des systèmes nucléaires excités, couvre un domaine temporel considérable selon l'énergie d'excitation et la structure particulière des états considérés. A titre d'exemple, le premier niveau excité du ^8Be décroît par émission de deux particules alphas avec une vie moyenne $T_{1/2} \sim 10^{-21}\text{s}$ alors que le premier niveau excité du ^{181}Ta a une durée de vie de plusieurs milliards d'années et constitue l'état dans lequel on trouve le Ta dans la nature.

Certains mécanismes d'excitation du noyau dans les réactions nucléaires sont différenciés en fonction de leurs caractéristiques temporelles. Ainsi on distingue des mécanismes d'excitation directe, profondément inélastique, par formation d'un noyau composé, pour des interactions allant de 10^{-21} à 10^{-15}s . Ces temps sont du même ordre de grandeur que les temps $t_r \sim 10^{-21}\text{s}$ et $\tau_K \sim 10^{-16}\text{s}$. Cette concordance a été exploitée pour mesurer la vie moyenne des systèmes nucléaires excités en utilisant une méthode connue sous le nom de l'horloge atomique [4]. L'interaction nucléaire modifie l'énergie des rayonnements X atomiques émis au cours de la collision. La formation d'un noyau composé est signée par l'émission d'un rayonnement X_{nc} dont l'énergie est caractéristique du nombre de protons dans le noyau composé. La mesure du taux de rayonnement X_{nc} émis durant la réaction permet de déterminer le rapport entre la vie moyenne du système nucléaire excité et la durée de vie d'un trou dans une couche électronique. Dans le cas de réactions profondément inélastiques, le temps de formation d'un état nucléaire intermédiaire, avec un nombre de protons bien défini, est trop court pour donner lieu à des états stationnaires du système électronique. On a alors $t_r < t < \tau_K$ et le rayonnement X émis présente un spectre continu, appelé rayonnement moléculaire. La probabilité de création d'un trou dans l'orbitale de la quasi-molécule formée au cours de la collision dépend du temps pendant lequel le noyau projectile et le noyau cible échangent des nucléons. La mesure de la probabilité d'excitation du système électronique permet de remonter au temps de contact des noyaux [5].

III - L'EXCITATION DU CORTEGE ELECTRONIQUE

III.1 Généralités

L'étude des effets du cortège électronique sur la désexcitation du noyau requiert de considérer le noyau et les électrons qui l'entourent comme un système unique. Le système est défini au départ par l'ensemble de ses caractéristiques nucléaires et de ses caractéristiques électroniques. Ce système change d'état si la partie nucléaire évolue *ou* si la partie électronique évolue. Le taux de décroissance du système, (λ_t) est déterminé par la somme des taux de décroissance du noyau λ_n et du cortège électronique λ_a .

$$\lambda_t = \lambda_n + \lambda_a$$

Pour étudier l'influence de l'environnement électronique sur les propriétés de décroissance du noyau, il faut perturber le cortège électronique. Cette perturbation s'effectue

en portant l'ion dans un état de charge q . L'ionisation du cortège électronique modifie l'énergie d'interaction entre le noyau et les électrons du cortège. Cette perturbation peut être significative si l'on considère que l'énergie totale de liaison des électrons dans un atome de numéro atomique Z , calculée dans le modèle de Thomas-Fermi est donnée par [6] (page 291):

$$E_e = 20.8 Z^{7/3} \text{ (eV)}$$

En général, après ionisation, le système électronique n'est pas laissé dans l'état d'énergie fondamental de l'ion de charge q . Il en résulte que la perturbation apportée au système dépend non seulement de l'état de charge q mais aussi de la configuration particulière des électrons liés.

Pour étudier l'évolution d'un tel système il faut évidemment se placer dans des situations où le noyau et le cortège électronique sont simultanément excités dans le même atome. La section efficace pour produire le système est donc le produit d'une section efficace de réaction nucléaire par une probabilité d'excitation du cortège électronique au cours d'une même collision. Cette probabilité d'excitation atomique peut être très variable selon le mécanisme de la collision, l'énergie, le numéro atomique du projectile et de la cible. Par exemple, la probabilité de créer un trou dans la couche K d'un atome de Sn au cours d'une réaction de fusion-évaporation induite à 4 MeV/uma par un Ni sur une cible de Fe est de $2 \cdot 10^{-2}$. Elle est seulement de 10^{-3} dans une réaction nucléaire induite par des protons de 12 MeV sur une cible de Sn. En revanche, la probabilité d'obtenir un ion Te avec un état de charge 46^+ dans une réaction d'excitation coulombienne du noyau de Te à 25 MeV/uma par une cible de Th est de l'ordre de 0,2. La probabilité de création de lacunes dans les couches K, L, M lors de collisions induites par des particules légères H^+ ou He^+ a été tabulée dans plusieurs approximations [7]. L'extension de ces calculs à des ions lourds a été traitée par Meyerhof et Taulberg et al [8]. L'effet des réactions nucléaires sur la probabilité d'ionisation d'un système a été étudié par Meyerhof et Chemin et l'on peut pour ce sujet se rapporter aux articles de revues [4], [9].

III.2 Ionisation d'un projectile par passage dans une cible solide ou gazeuse

Cette technique est la plus utilisée pour obtenir des ions lourds très chargés. A la sortie de la cible, l'état de charge obtenu dépend de la compétition entre les processus d'ionisation [7] et de capture d'électrons [10]. La détermination de la distribution des états de charge du projectile après la cible requiert également la connaissance des sections efficaces d'excitation entre couches et des taux de transition entre états excités. En suivant Rozet et al [11], on définit à partir des sections efficaces élémentaires de chacun des processus mentionnés ci-dessus, des sections efficaces de gain d'électrons, G_n , et de perte d'électrons, L_n , dans une couche particulière n du cortège électronique. On peut alors écrire un système d'équations différentielles couplées définissant l'évolution de la fraction des ions Y_n^q ayant q lacunes dans une couche n en fonction de la profondeur de pénétration dans la cible. Pour des ions lourds de grande énergie il suffit de considérer les électrons dans les orbitales 1s, 2s, 2p, correspondant à 13 termes Y_n^q . La figure 2 montre les résultats obtenus par cette méthode pour des ions Kr à 35 MeV/uma traversant une cible mince d'aluminium. La comparaison entre les résultats expérimentaux et les estimations théoriques démontre la fiabilité de ces prédictions dans un large domaine d'énergie.

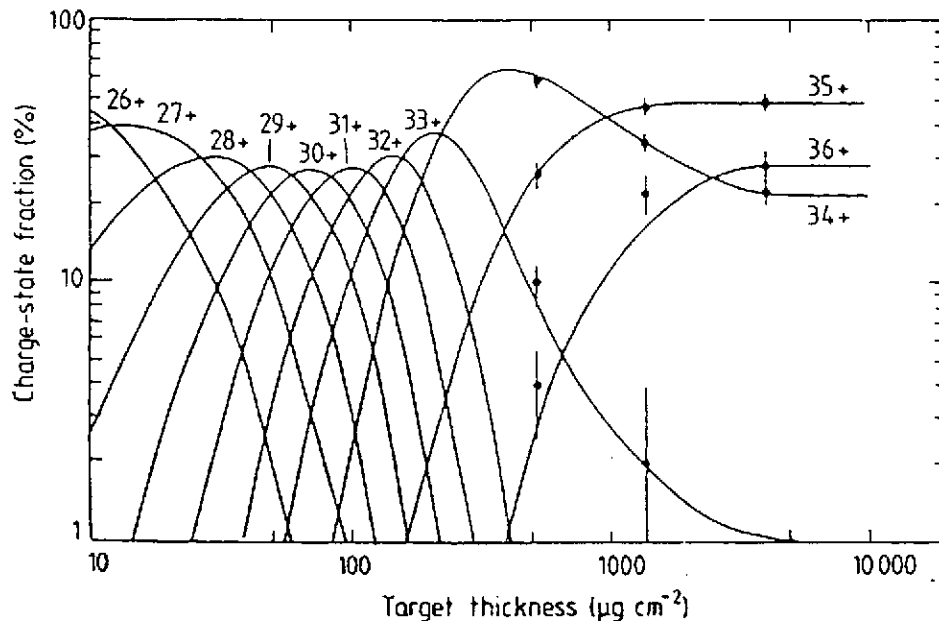


Figure 2

Distribution de l'état de charge des ions Kr d'énergie 35 MeV/uma à la sortie d'une feuille d'épluchage en fonction de l'épaisseur traversée [11]

III.3 Etat de charge dans un plasma

Une alternative pour produire des ions lourds multichargés consiste à générer un plasma avec un laser de puissance et une cible solide ou gazeuse. Le plasma formé est un ensemble globalement neutre d'ions et d'électrons. Le plasma est "chauffé" par l'énergie apportée par la radiation laser pendant la durée de l'impulsion. L'énergie du laser est essentiellement absorbée par un mécanisme de Bremsstrahlung inverse. Des détails sur le chauffage du plasma sont donnés au chapitre VI.

La durée de l'impulsion dépend des lasers utilisés. Pour des lasers dits de puissance elle couvre un large domaine allant de quelques 10^{-15} s (laser fs) à quelques 10^{-7} s (laser CO₂). L'énergie dans chaque impulsion est également variable, entre quelques 10^{-3} J et plusieurs centaines de Joules (voir plus pour un laser tel que Megajoule). Les propriétés des plasmas délivrés par ces lasers sont très différentes en fonction de la durée d'impulsion, de la forme de l'impulsion (Gaussienne, rectangulaire,...), de la longueur d'onde de la radiation laser et de l'éclairement de la cible.

L'éclairement, en (W/cm^2), qui représente l'intensité (en W) divisée par la surface d'interaction au niveau de la cible (tache focale) est la caractéristique essentielle qui détermine les propriétés des plasmas créés. On obtient par exemple $10^{18} \text{ W}/\text{cm}^2$ pour un laser de 10 mJ, 30 fs, focalisé sur $30 \mu\text{m}^2$ à la longueur d'onde courante de $1,06 \mu\text{m}$; $10^{17} \text{ W}/\text{cm}^2$ pour un laser de 300 J, 10 ns, $\lambda = 1,06 \mu\text{m}$ focalisé également sur $30 \mu\text{m}^2$ et seulement $3 \cdot 10^{12} \text{ W}/\text{cm}^2$ pour un laser 300 mJ, 10 ns, $\lambda = 1,06 \mu\text{m}$ et une tache focale de $900 \mu\text{m}^2$.

Le degré d'ionisation, la température du plasma, la densité ionique peuvent être calculés à partir de codes numériques traitant l'évolution hydrodynamique du fluide en trois dimensions en fonction de la durée de l'impulsion et de l'éclairement. Il existe également un certain nombre de relations analytiques simples, déduites de modèles à une dimension en supposant que les composantes du plasma sont à l'équilibre thermodynamique local (ETL), qui permettent d'obtenir les ordres de grandeur de l'état de charge moyen, de la température et de la densité.

Pour une température T donnée, dans un plasma à l'équilibre la distribution des états de charges peut être calculée à partir de l'équation de Saha :

$$\frac{n_{q+1}}{n_q} = \frac{b_{r-1}}{b_r} \exp \left[-\frac{\chi_r}{kT} \right]$$

Dans laquelle n_q et n_{q+1} , b_r et b_{r-1} sont respectivement les densités d'ions et les facteurs statistiques associés à la configuration de r et de $r - 1$ électrons liés, dans les états de charge q et $q + 1$, χ_r le potentiel d'ionisation associé à la configuration des r électrons liés, T la température du plasma à l'équilibre, k la constante de Boltzmann. La figure 3 présente le résultat de l'état de charge moyen obtenu à partir de l'équation de Saha pour des ions U en fonction de la température du plasma T .

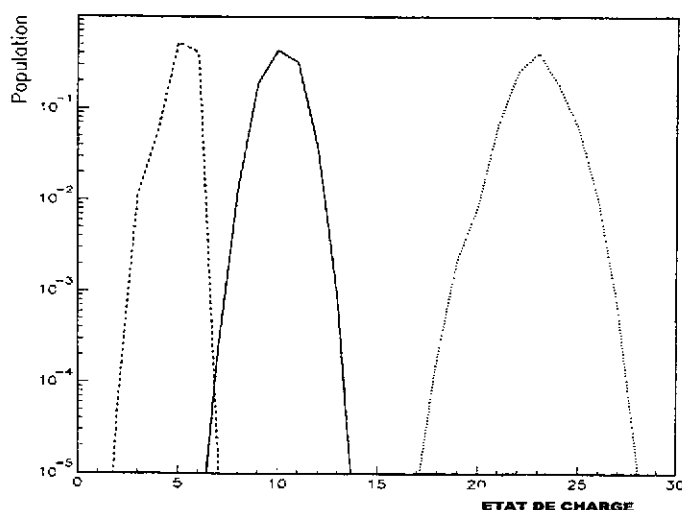


Figure 3

Distributions calculées de l'état de charge des ions Uranium dans un plasma pour des températures $T = 5$ eV (tirets), $T = 20$ eV (trait plein), $T = 100$ eV (pointillés) [12]

IV - INFLUENCE DE L'ETAT DE CHARGE SUR LES DECROISSANCES RADIO-ACTIVES

Les modes de décroissances nucléaires par capture électronique (CE), par émission β et par Conversion Interne (CI) font directement intervenir le couplage entre le noyau et le cortège électronique. On peut donc attendre des effets significatifs de la variation de l'état de charge ionique sur la période de demi-vie des atomes radioactifs.

IV.1 Décroissances isobariques

Le calcul du taux de décroissance du système atomique fait intervenir les fonctions d'onde de l'état final ψ_f et de l'état initial ψ_i du système couplées par un hamiltonien d'interaction H_{if} (électrofaible ou électromagnétique). L'élément de matrice correspondant V_{if} est donné par :

$$V_{if} = \langle \psi_f | H_{if} | \psi_i \rangle \quad (4.1)$$

Les fonctions ψ_f et ψ_i s'expriment comme un produit des fonctions d'onde décrivant la partie nucléaire $\chi_{i,f}$ et la partie électronique $\phi_{i,f}$ du système.

L'ionisation affecte directement les fonctions $\phi_{i,f}$ de 3 manières différentes :

a) l'ionisation modifie le taux d'occupation des couches électroniques dans le système initial

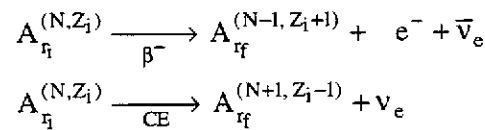
b) l'ionisation modifie la partie radiale de la fonction d'onde décrivant chacun des états du système. Elle modifie la probabilité de présence des électrons en fonction de la distance au noyau, en perturbant le potentiel coulombien qui résulte de la distribution des charges nucléaires du noyau et des autres électrons. Pour chaque état de charge, il faut refaire un calcul Hartree-Fock pour connaître les fonctions d'onde $\phi_{i,f}(r)$ à utiliser dans l'expression (4.1).

c) l'ionisation modifie l'énergie totale d'interaction entre les électrons et le noyau. Cette énergie totale fixe l'énergie disponible dans la désexcitation de l'atome radioactif considéré.

Ces 3 effets sont toujours à considérer simultanément. Cependant, leur influence particulière sur le taux de décroissance est plus ou moins importante selon les cas considérés.

Considérons un système dans l'état initial $A_{r_i}^I$ où l'indice I regroupe l'ensemble des propriétés nucléaires dans l'état initial et l'indice r_i représente le nombre d'électrons liés dans l'état initial. De même, soit $A_{r_f}^F$, l'état final du système. Soit B_i^I et B_f^F les sommes respectives des énergies de liaison des électrons dans les atomes neutres de numéro atomique Z_i pour l'état initial et Z_f pour l'état final. Soit $B_{r_i}^I$ et $B_{r_f}^F$ la somme des énergies de liaison des r_i et r_f , électrons liés. La configuration des r_i , r_f électrons n'est pas nécessairement la configuration fondamentale.

Les décroissances nucléaires β^- et capture électronique CE s'écrivent en fonction des symboles précédents :



L'énergie maximum disponible dans la décroissance s'écrit en fonction des énergies des masses atomiques des atomes neutres M^I, M^F :

$$Q_{IF} = (M^I - M^F) c^2 + (B_i^I - B_f^F) - (B_{r_i}^I - B_{r_f}^F) \quad (4.2)$$

La somme des deux premiers termes au second membre de (4.2) représente la différence des masses des noyaux.

Dans le cas où la décroissance prend place entre des états nucléaires excités E^{I*} et E^{F*} il faut rajouter dans l'expression du Q de réaction un terme $(E^{I*} - E^{F*})$.

On note que si la décroissance β^- s'effectue dans un atome neutre alors $r_i = Z_i$ et $r_f = r_i = Z_{f-1}$. Dans le cas de la CE pour un atome neutre $r_i = Z_i$ et $r_f = r_i - 1 = Z_f$. L'énergie de liaison de l'électron capturé est comprise dans le terme $B_{r_f}^F$.

Pour les décroissances β^+ l'expression du Q de la réaction doit tenir compte de la formation d'une paire électron-positron :

$$Q_{IF}^{\beta+} = Q_{IF} - 2 m_e c^2 \quad (4.3)$$

Dans le cas où les ions dans l'état initial et dans l'état final sont immergés dans un plasma, les énergies B_i^I et B_f^F sont affectées par la densité des électrons libres qui entourent les ions au moment de leur décroissance. Le terme correspondant, appelé "dépression du continuum" peut être important dans le cas de plasmas très denses rencontrés dans certaines conditions astrophysiques [13], [14].

L'examen de la relation (4.2) montre immédiatement que des effets importants, dus à l'ionisation, sont attendus si le premier terme, qui correspond au Q de la réaction dans l'atome neutre ($r_i = Z_i$), n'est pas beaucoup plus grand que le troisième terme qui, lui, correspond à la variation de l'énergie de liaison apportée par l'ionisation du système. A la limite on voit que, dans certains cas, la valeur de Q calculée à partir de la relation (4.2) peut devenir négative si la somme des deux premiers termes (c'est-à-dire la différence de masse des noyaux) est, en valeur absolue, plus petite que la variation d'énergie due à l'ionisation. Dans ce dernier cas, une valeur négative signifie un changement de radioactivité du système.

Pour les décroissances isobariques, le taux de décroissance du système $A^I \rightarrow A^F$, λ^{IF} , est donné par [14] :

$$\lambda^{IF} = \text{Ln } 2 \times \frac{F_{IF}}{f_i} \quad (4.4)$$

où la fonction f_i dépend du type de transition β , (permise, super permise, interdite au premier ordre) et contient l'information sur la partie nucléaire du système. Cette fonction est supposée non perturbée par une variation de l'état de charge ionique et prend donc la valeur utilisée pour la décroissance de l'atome neutre.

La fonction F_{IF} correspond à la partie leptonique du système. Elle fait directement intervenir le Q de la réaction et dépend directement de l'état de charge. Dans le cas de la capture électronique d'un électron s , et pour une transition permise, l'expression de F_{IF} a une forme simple.

$$F_{IF} = \frac{\pi}{2} \sigma_n \varphi_{nl}^2(0) \times \left[\frac{m_e c^2 + Q_{IF}}{m_e c^2} \right] \quad (4.5)$$

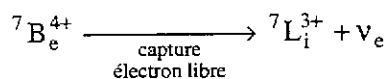
ou σ_n varie de 0 à l'unité en fonction du taux d'occupation de la couche.

Quelques exemples vont nous permettre de montrer les effets de l'ionisation sur le taux de décroissance radioactive.

1. Cas du ${}^7\text{Be}$

La décroissance du ${}^7\text{Be}$ vers le ${}^7\text{Li}$ se fait à 100 % par CE avec une période $T_{1/2} = 53$ jours. Dans l'atome neutre $Q = 0.862$ MeV. Sa valeur est très supérieure au terme d'ionisation $B_i^I - B_f^F \sim 0,2$ keV et donc les effets relatifs à la variation d'énergie sont très petits. En revanche le taux de capture d'un électron sur les couches L et K est directement proportionnel au nombre d'électrons liés sur ces couches. En conséquence le ${}^7\text{Be}^{4+}$, qui ne possède plus d'électrons liés, est un élément stable que l'on retrouve dans le rayonnement cosmique.

Le seul mode de décroissance du ${}^7\text{Be}^{4+}$ correspond à la capture par le noyau d'un électron libre.



Le taux de capture au continuum dans les plasmas stellaires a été calculé par Bahcall [15]. Il constitue l'une des données essentielles entrant dans la détermination du flux de neutrinos solaires de haute énergie. Ce processus de CE d'un électron libre n'a jamais été mis en évidence en laboratoire.

2. Cas du ^{53}Fe

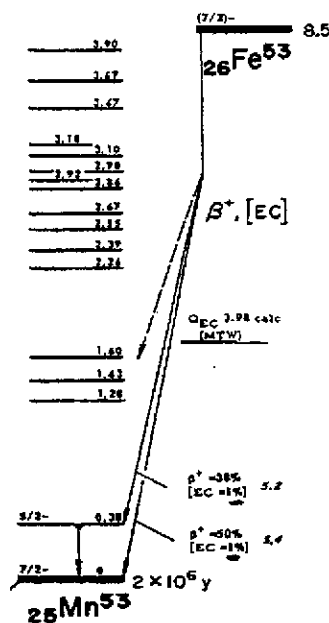


Figure 4
Schéma de décroissance du noyau
de ^{53}Fe

Le ^{53}Fe , dans l'état fondamental, décroît vers ^{53}Mn essentiellement par émission β^+ en compétition (2 %) avec une CE. Dans l'atome neutre la période est $T_{1/2} = 8,5$ mn et $Q_{ce} = 3,98$ MeV. Le terme d'ionisation B_i^1 vaut 2,8 keV et représente moins de 0.1 % de la valeur de Q_{IF} . Il a une contribution négligeable sur la valeur de F_{IF} et sur le taux de décroissance quel que soit l'état de charge. Etant donné le rapport $\lambda_{CE}/\lambda_{\beta^+}$, la variation de $T_{1/2}$ correspondant à la fermeture totale du canal de désintégration par CE dans le $^{53}\text{Fe}^{26+}$ est de l'ordre de 2 %.

En conséquence, pour un ion $^{53}\text{Fe}^{26+}$ complètement ionisé, la période doit rester très voisine de celle de l'atome neutre ce que confirment les résultats expérimentaux [16] sont donnés dans le tableau 1.

Le ^{53}Fe présente un état isomérique ($19/2^-$) situé à 3040 keV au-dessus de l'état fondamental ($7/2^-$) qui décroît également vers le ^{53}Mn . La décroissance par CE du $^{53}\text{Fe}^m$ représentant une fraction petite de la décroissance par β^+ , la période de l'état isomérique n'est pas affectée par l'état de charge.

TABLEAU 1

Noyau	$T_{1/2}^{\text{exp}}$ neutre minutes	$T_{1/2}^{\text{Calc}}$ (26^+) minutes	$T_{1/2}^{\text{exp}}$ mesuré (26^+) minutes
$^{53}\text{Fe}^{\text{gs}}$	8,51 (2)	8.73 (8)	8,5 (3)
$^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$	2,58 (4)	2,58 (4)	2,48 (5)

Périodes de décroissance du ^{53}Fe dans l'état fondamental $^{53}\text{Fe}^{\text{gs}}$ et dans l'état isomérique $^{53}\text{Fe}^{\text{m}}$ dans un atome et dans un ion nu

3. Cas du $^{163}\text{Dy}^{66+}$

Dans la nature l'atome de ^{163}Ho décroît à 100 % par CE vers l'atome stable de ^{163}Dy . La valeur de $T_{1/2}$ pour ^{163}Ho neutre est $\sim 10^4$ ans. La valeur de $Q_{\text{CE}} = 2,3$ keV, particulièrement petite, autorise seulement la capture des électrons de la couche 3s.

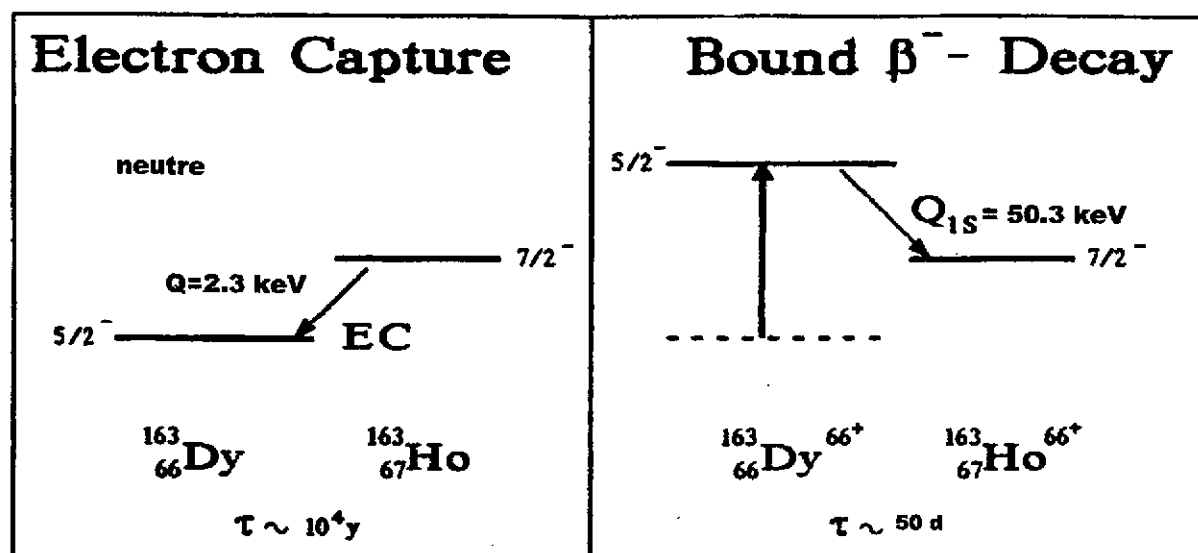
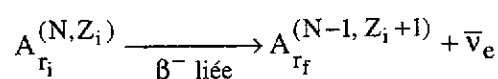


Figure 5

Schéma de décroissance du ^{163}Dy pour un atome neutre et pour un ion nu [17]

Dans le cas de ^{163}Ho , pour un atome neutre, le terme Q_{IF} est plus petit que la différence des énergies de liaison dans les atomes de ^{163}Dy et ^{163}Ho (2^{ème} terme du second nombre de l'équation (4.2)). Il en résulte que pour un ion de ^{163}Ho hydrogénoïde ou complètement épluché, le Q de la réaction évalué à partir de l'équation (4.2) prend une valeur négative. La signification physique de cette valeur négative est simplement que $^{163}\text{Ho}^{66+}$ constitue l'état stable du multiplet isobarique $A = 163$ pour des ions dans l'état de charge $q = 66$. En revanche l'ion $^{163}\text{Dy}^{66+}$ est un système instable. $^{163}\text{Dy}^{66+}$ ne peut pas décroître vers $^{163}\text{Ho}^{66+}$ par une décroissance β^- avec émission d'un électron dans le continuum. En revanche, un mécanisme de décroissance β^- où l'électron émis par le noyau vient occuper une orbite liée, non occupée, $1s$ ($E_{1s}^b = 65,13 \text{ keV}$) ou $2s$ ($E_{2s}^b = 16,5 \text{ keV}$) dans le ^{163}Dy est possible. Ce mécanisme porte le nom de décroissance β^- liée. Son existence a été prédite par Daudel et al dès 1947 [18] et sa mise en évidence expérimentale a été faite par Jung et al [19] en 1992 dans le $^{163}\text{Dy}^{66+}$. La période mesurée du $^{163}\text{Dy}^{66+}$ est de 47 jours, en excellent accord avec les prédictions théoriques.

La décroissance β^- liée s'écrit symboliquement :



L'antineutrino émis est monoénergétique. Le nombre d'électrons liés dans l'état final $r_f = r_i + 1$. La radioactivité $\beta_{\text{liée}}^-$ apparaît comme le mécanisme inverse de la capture électronique. Cette décroissance $\beta_{\text{liée}}^-$ peut avoir lieu dans tous les systèmes émetteurs β^- à la condition que l'orbitale liée ne soit pas complètement remplie. Néanmoins la modification de la période apportée par cette nouvelle voie de décroissance n'est réellement importante que dans le cas où l'énergie de liaison de l'électron capturé est voisine du Q de la réaction dans l'atome neutre.

Takahashi et Yokoi ont calculé la variation de la période d'un certain nombre d'éléments placés dans des plasmas stellaires denses des températures de plasmas variant entre $5 \cdot 10^7 \text{ °K}$ et $5 \cdot 10^8 \text{ °K}$ et des densités d'électrons libres $10^{26} \text{ cm}^{-3} \leq n_e \leq 10^{27} \text{ cm}^{-3}$ [13].

IV.2 Décroissances électromagnétiques

Généralités sur la conversion interne

Le processus de conversion interne nucléaire, au cours duquel un noyau excité transfère directement son énergie aux électrons K, L, M, etc... qui entourent le noyau est l'un des exemples les plus caractéristiques du couplage entre le cortège électronique et le noyau. Le graphe de Feynmann représentant cette interaction est donné sur la fig. 6. Le formalisme complet de cette interaction étant développé dans un autre cours nous ne rappellerons ici que certains résultats essentiels.

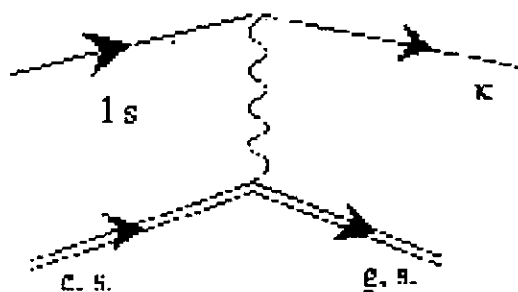


Figure 6

Graphe des interactions pour une conversion interne sur la couche K. Les doubles lignes se rapportent au noyau. Les lignes simples se rapportent au cortège électronique

Au cours du processus, un électron lié dans l'état initial est émis dans le continuum. L'état de charge du système s'incrémente de une unité. L'énergie, le moment angulaire total et la parité du système doivent être conservés.

L'énergie de l'électron dans le continuum, E_e , est donnée en fonction de l'énergie de la transition E_γ et de l'énergie de liaison de l'électron converti E_i^b sur une orbitale i par :

$$E_e = E_\gamma - E_i^b \quad (4.6)$$

Selon le caractère (Electrique ou Magnétique) et la multipolarité de la transition $= L$, le moment angulaire de l'électron dans le continuum l_f en fonction du moment angulaire orbital dans l'état initial l_i , obéit aux règles de sélection :

Transition magnétique (ML)	$ L - l_i - 1 \leq l_f \leq L + l_i + 1$	$L + l_i + l_f$	impair
Transition électrique (EL)	$ L - l_i \leq l_f \leq L + l_i$	$L + l_i + l_f$	pair

(4.7)

La désexcitation du noyau par CI étant toujours en compétition avec l'émission γ (sauf pour les transitions entre états 0^+ , 0^+ ou seule la CI est permise) on définit un coefficient de conversion interne (CCI) partiel correspondant à chaque couche (ou sous-couche) électronique mise en jeu :

$$\alpha_i = \frac{\lambda_i}{\lambda_\gamma} \quad (4.8)$$

où λ_i et λ_γ sont respectivement les taux de décroissance de l'état nucléaire excité par émission d'un électron de la couche i et par émission de rayonnement γ . La période correspondant à la décroissance du niveau par interaction électromagnétique (en omettant le processus de création de paires e^+ , e^-) est alors :

$$T_{1/2} = \frac{0,693}{\lambda_\gamma(1 + \alpha_T)} \quad (4.9)$$

où α_T définit le CCI total :

$$\alpha_T = \sum_i \alpha_i \quad (4.10)$$

En négligeant les termes "dits intérieurs" (voir cours sur l'interaction électromagnétique), α_i s'écrit pour une transition magnétique d'énergie ω , de multipolarité L , entre 2 états électroniques de spin j_i et j_f [20], (éq. 10.135 – page 372).

$$\alpha_i(M) = \pi a \omega n_i \sum_{\kappa'} \frac{(2j_i + 1)(2j_f + 1)}{L(L+1)} \left(\begin{matrix} j_i & j_f & L \\ 1/2 & -1/2 & 0 \end{matrix} \right)^2 (\kappa + \kappa')^2 |R_{\kappa\kappa'}|^2 \quad (4.11)$$

où a est la constante de structure fine et n_i le nombre d'électrons sur la couche i .

La sommation s'étend sur tous les états κ' du moment angulaire relativiste permis par les règles de sélection. κ et κ' sont reliés à j_i et j_f par les relations $j_i = |\kappa| - 1/2$, $j_f = |\kappa'| - 1/2$.

Dans cette expression $R_{\kappa\kappa'}$ représente l'élément de matrice radial. Il met en jeu les fonctions d'onde radiales de l'électron dans l'état initial lié (défini par κ) et dans l'état final du continu défini par (κ'), couplées par le champ électromagnétique représenté par la fonction de Hanckel $H_L^1(\omega r)$. ω et r sont respectivement l'énergie de la transition et la distance au centre du noyau.

La fonction $H_L^1(kr)$ décroît très rapidement avec le produit (kr) . Cette propriété explique que pour des transitions magnétiques, quelle que soit la couche sur laquelle l'électron est converti, seule la partie de la fonction d'onde de l'électron comprise entre l'origine et le rayon de la couche K , joue un rôle significatif dans la détermination de $\alpha_i(M)$ [20], (figure 10.4 page 409). Cette remarque, associée à la valeur de la densité électronique pour les différentes couches électroniques (cf. Ch II) explique qualitativement pourquoi le CCI, $\alpha_K(M1)$, est systématiquement plus grand que $\alpha_L(M1)$, lui même plus grand que $\alpha_M(M1)$. Elle explique aussi les différences très importantes des valeurs de α_L pour les sous couches L_1, L_2, L_3 et la dépendance très forte des coefficients $\alpha_{L_1}, \alpha_{L_2}, \alpha_{L_3}$ en fonction du coefficient de mélange multipolaire (M1, E2 par exemple). Ces propriétés sont à la base de l'utilisation de la CI en spectrométrie nucléaire pour déterminer la multipolarité des transitions nucléaires et le coefficient de mélange multipolaire d'une transition, quantités qui sont difficilement accessibles par d'autres méthodes [21].

Effet de l'ionisation

L'expression (4.11) montre que les effets de l'ionisation du système atomique sur la valeur de α_i , et donc sur la période du niveau, sont les mêmes que pour les décroissances isobariques :

a) L'ionisation modifie la valeur de E_i^b . Elle entraîne une variation de l'énergie E_e (éq 4.6) qui intervient directement sur la fonction d'onde de l'électron dans le continuum et sur la valeur de l'élément de matrice radial. La fonction d'onde radiale d'un électron d'énergie $E_e = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_e}$, pour les petites valeurs de (kr) , est de la forme ([6], page 133) :

$$\phi_{kl} = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{k^{l+1}}{(2l+1)!!} \left(\frac{r}{a_0} \right)^l \quad (4.12)$$

$$\text{avec la condition de normalisation } \int_0^\infty \phi_{k'l} \phi_{kl} r^2 dr = \delta(k'-k) \quad (4.13)$$

D'autre part, la relation (4.6) impose que $E_\gamma > E_i^b$ pour que la CI ait lieu sur une couche (i) donnée. Nous verrons au paragraphe suivant les effets particuliers qui apparaissent pour $E_\gamma < E_i^b$.

b) L'ionisation modifie la fonction d'onde électronique de l'état initial, en modifiant le potentiel coulombien vu par l'électron. Plus le degré d'ionisation est important, plus le champ coulombien vu par les électrons restants s'approche de celui du noyau seul. Pour les électrons des couches internes K ou L, la partie de la fonction d'onde radiale au voisinage du noyau, qui intervient dans le calcul de l'élément de matrice $R_{KK'}$, n'est que faiblement perturbée par l'ionisation. Cette variation est beaucoup plus faible que la variation de l'énergie de liaison de ces mêmes électrons qui, pour un degré d'ionisation identique, dépend de la modification de la fonction d'onde sur l'ensemble des distances entre l'électron et le noyau. Ce résultat est illustré sur la figure 7 qui montre la variation de la densité de probabilité de l'électron 1s dans un atome neutre de Pb et dans un ion Pb hydrogénéoïde.

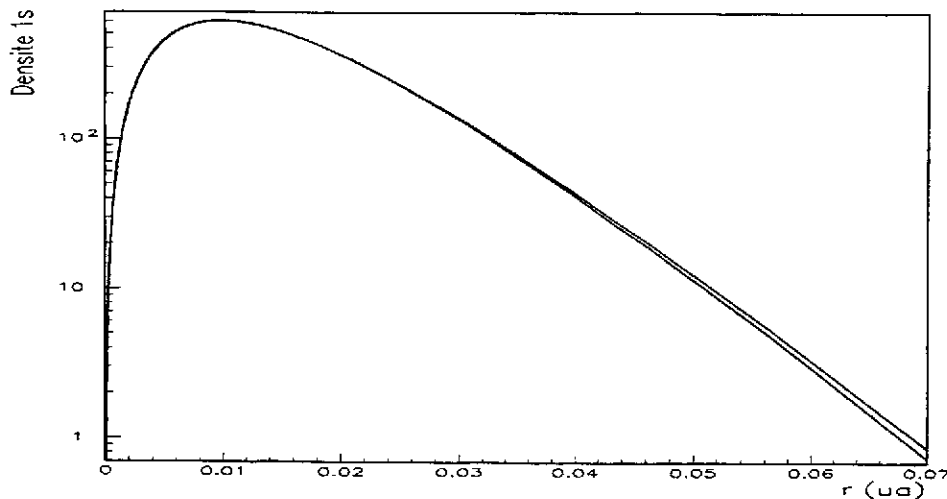


Figure 7

Densité de probabilité, $4\pi r^2 |\phi(r)|^2$, pour un électron 1s dans un atome neutre de Pb et dans un Pb^{81+} (hydrogénéoïde) en fonction de r exprimé en unité atomique (ua)

Les fonctions d'ondes $\phi(r)$, normalisées à l'unité dans les deux cas, sont le résultat d'un calcul relativiste complet. Dans la région $r < 0.01$ ua, qui intervient dans le calcul de l'élément de matrice $R_{KK'}$, la différence entre les deux fonctions reste toujours inférieure à 1 % [22]

c) Enfin, le taux d'occupation d'une couche (sous-couche) électronique donnée (i) au moment de la CI intervient directement dans l'expression de α_i . En première approximation on peut dire que α_i est simplement proportionnel à n_i .

Aspects expérimentaux

L'influence de l'ionisation du cortège électronique sur le coefficient de CI, et sur la période de décroissance nucléaire, sera abordée à partir d'exemples correspondant à différentes expériences.

Cas de ^{197}Au

La première expérience de l'effet de l'ionisation sur le coefficient de CI a été faite dans le système ^{197}Au . Le 1^{er} état excité de ^{197}Au ($J^I = 1/2^+$) décroît vers l'état fondamental ($J^F = 3/2^+$) par une transition M1 de 77 keV. Dans ce système, la CI sur la couche K est en principe interdite car $E_K^b > E_\gamma$. La période du niveau excité dans l'atome neutre est $T_{1/2}^0 = 1,91$ ns. Pour un faisceau de ^{197}Au , dans un état de charge moyen $\bar{q} = 9,5$ on mesure $T_{1/2}^{9,5} = (1,84 \pm 0,10)$ ns [23]. A l'incertitude expérimentale près, la période $T_{1/2}^{9,5}$ pour l'ion est la même que celle dans l'atome neutre. Cet exemple démontre que les fonctions d'onde des électrons L et M sont peu affectées par le fait d'avoir enlevé 10 électrons périphériques à l'Au comme on pouvait le prévoir à partir des résultats de la figure 7.

Cas de ^{57}Fe

Un second exemple concerne l'effet de l'ionisation sur la vie moyenne du niveau à 14 keV dans le ^{57}Fe . Dans l'atome de ^{57}Fe les CCI α_K et α_L valent respectivement 7,68 et 0,79. La vie moyenne de cette transition M1 a été étudiée par Phillips et al [24] pour des états de charge du Fe compris entre 19 et 25. Les valeurs obtenues sont reportées dans le tableau 2. Entre les valeurs $q = 0$ et $q = 23$, le coefficient de CI sur la couche K varie de 2 % seulement. La contraction de la fonction d'onde de l'état initial au voisinage du noyau en fonction de q est ici pratiquement compensée par la diminution de l'énergie, E_e , de l'électron dans le continuum résultant de l'augmentation de l'énergie de liaison E_{1s}^b .

La valeur de $T_{1/2}^{25+}$ pour un ion de ^{57}Fe hydrogénoïde est particulièrement intéressante dans la mesure où elle montre que des effets particuliers de la structure atomique se reportent sur la valeur de α . Pour l'ion Fe^{25+} , le couplage du spin nucléaire $J^I = 3/2$ au spin électronique $j_L = 1/2$ entraîne la formation d'états hyperfins $F^I = 1$ ou 2. Les règles de sélection (4.7) montrent que α_K donné par l'expression (4.1) est la somme de 2 termes qui correspondent à des électrons de moment angulaire dans le continuum de valeurs permises $l_f = 0$ et $l_f = 2$. En raison du faible recouvrement de la fonction d'onde $l = 2$ avec la fonction d'onde de l'état initial $1s$, le terme associé à $l = 2$ dans α_K est environ 10 fois plus petit que le terme associé à $l = 0$. La CI de la transition avec émission d'un électron $l = 0$ ne peut coupler que l'état hyperfin initial $F^I = 1$ et l'état hyperfin final $F^F = 1/2$. La désexcitation de état $F^I = 2$ vers $F^F = 1/2$ requiert nécessairement l'émission d'un électron $l = 2$.

On découvre ici que le coefficient de CCI α_K^{25} , et la période du niveau nucléaire $T_{1/2}^{25}$, dépend du détail de la configuration électronique. Pour le même état de charge, $q = 25$, de l'ion ^{57}Fe , la période du niveau à 14 keV a deux valeurs très différentes selon le sous-état hyperfin. La mesure donne pour $T_{1/2(F=1)}^{25} = 78$ ns, une valeur proche de celle dans l'atome neutre en accord avec le calcul, alors que $T_{1/2(F=2)}^{25}$ calculée a une valeur 10 fois plus grande.

TABLEAU 2

q	0	20	23	24	25 F = 1	25 F = 2
$T_{1/2}$ (ns) mesurée	98	97	96	100	78	-
$T_{1/2}$ (ns) calculée	98	-	-	107	82	901

Valeurs de la période du 1^{er} niveau du ^{57}Fe en fonction de l'état de charge telles que mesurées par Phillips [24]

Dans les exemples précédents il apparaît que, même pour des degrés d'ionisation très élevés, la période de l'état nucléaire change relativement peu aussi longtemps que le taux d'occupation par les électrons de la couche considérée n'est pas directement affecté.

Si l'ionisation affecte directement le taux d'occupation, les effets sur la durée de vie du niveau peuvent être spectaculaires. Par exemple, le noyau de ^{74}Kr a un premier état excité 0^+ qui ne peut décroître vers l'état fondamental de spin 0^+ que par CI. La largeur Γ_γ est nulle en raison des règles de sélection sur l'émission γ qui interdit les transitions monopolaires. Pour un ion de ^{74}Kr complètement épluché, le système dans l'état excité 0^+ est stable. Cette propriété a été récemment utilisée au Ganil pour transporter un faisceau d'ions sur plusieurs mètres [25].

Cas de ^{235}U

Un autre exemple concerne ^{235}U dont le premier niveau excité, situé à 76 eV au-dessus de l'état fondamental, décroît par une transition E3. La période de ce niveau dans l'atome neutre est de 27 mn. Le coefficient de CI de cette transition sur les couches 6p, 6d est estimé théoriquement : $\alpha_T \sim 10^{20}$. La configuration électronique de l'atome neutre d'Uranium est [Hg] ($6p^6 5f^{13} 6d^4 7s^2$). On constate immédiatement que pour un ion ^{235}U , dans l'état de charge $q = 25$, la CI est impossible puisque les couches 6d et 6p sont vides. En conséquence la période du niveau excité est augmentée par un facteur $\sim 10^{20}$ et devient supérieure à la période du niveau fondamental de ^{235}U .

V - VARIATION DE LA PERIODE DANS LE ^{125}Te EN FONCTION SON ETAT DE CHARGE

V.1 Blocage de la conversion interne

Le noyau de ^{125}Te possède un premier état excité $(3/2)^+$ situé à une énergie de 35,4915 keV au-dessus de l'état fondamental $(1/2)^+$. La décroissance du niveau $(3/2)^+$ s'opère par une transition M1 qui est convertie sur la couche K ($\alpha_K = 11,92$) et sur les couches externes ($\alpha_{L_1} = 1,4$; $\alpha_{L_{23}} = 0,18$). La valeur du coefficient $\alpha_T = 13,65 \pm 0,55$ dans l'atome neutre correspond à une période $T_{1/2}^\circ = 1,496$ ns. Le coefficient de mélange, $\delta^2 = 8,7 \cdot 10^{-4}$, entre les composantes M1 et E2 a été établi à partir du rapport entre les intensités des raies de conversion L_1, L_2, L_3 [26].

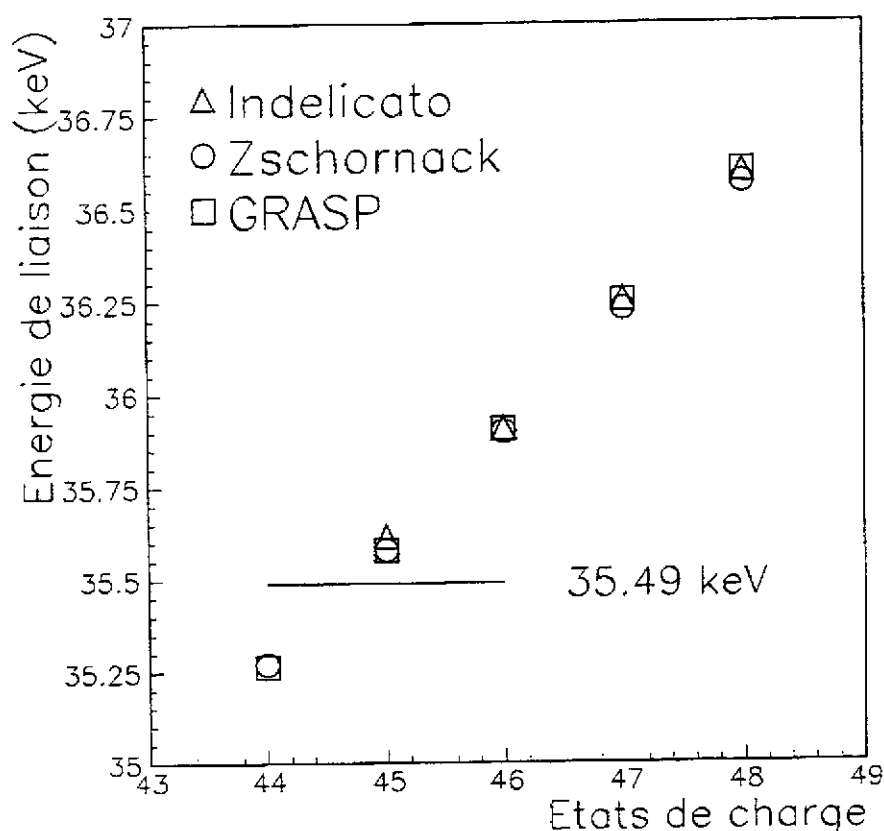


Figure 8

*Energie de liaison d'un électron 1s du Te en fonction de l'état de charge calculée à partir de différents codes Hartree-Fock relativistes.
L'énergie d'excitation de l'état 3/2⁺ de ¹²⁵Te est également indiquée*

La variation de l'énergie de liaison des électrons 1s en fonction de l'état de charge d'un ion Te est donné sur la figure 8. Les calculs ont été faits pour des ions Te dans leur configuration fondamentale. Ils prennent en compte les effets relativistes et les effets de QED. L'incertitude sur ces calculs est estimée à 1 eV. On constate que pour la charge $q = 45$ l'énergie de liaison d'un électron K, E_K^b devient supérieure à l'énergie de la transition $E_\gamma = 35,49$ keV. D'après la relation (4.6) la CI sur la couche K doit être interdite énergétiquement à partir de cet état de charge. Le taux de décroissance du niveau $(3/2)^+$ est alors fixé par la CI sur la couche L, qui reste peuplée pour cet état de charge, et par le taux λ_γ d'émission de photons.

$$\lambda^{q>44} = \lambda_\gamma + \lambda_L^q = \lambda_\gamma (1 + \alpha_L^q) \quad (5.1)$$

La période du niveau $T_{1/2}^{q>44}$ s'accroît en principe fortement au passage par l'état de charge $q = 45$ et ce bien que les états électroniques 1s soient toujours occupés.

$$T_{1/2}^{q>44} = T_{1/2}^\circ \frac{(1 + \alpha_T^\circ)}{(1 + \alpha_L^q)} \quad (5.2)$$

La condition d'état de charge pour laquelle $E_k^b > E_\gamma$ définit la charge critique du système q_c . On parle alors du blocage de la conversion interne.

Mise en évidence expérimentale du blocage de la CI

Pour amener le Te dans des états de charges $q \geq q_c = 45$, on utilise la méthode d'épluchage par une feuille mince de ^{232}Th . La traversée de la cible par le faisceau de Te à 25 MeV/UMA permet également de porter une fraction des noyaux de Te dans un état excité par interaction coulombienne avec les noyaux de Th. Les états excités du noyau de Te décroissent en partie vers le premier état excité dans un temps de l'ordre de 10^{-12}s . On mesure ensuite la période $T_{1/2}^q$ de décroissance du niveau $(3/2)^+$ vers le fondamental en fonction de l'état de charge q à l'aide d'un spectromètre magnétique.

Les détails expérimentaux sont donnés dans les références [27,28].

La variation de $T_{1/2}^q$, pour des états de charge $44 \leq q \leq 48$ est donnée dans le tableau 3.

Il apparaît que le blocage de la CI sur la couche K se produit bien, mais seulement à partir de la charge $q = 47$ pour laquelle la configuration électronique du Te est $1s^2 2s^2 2p_{1/2}$.

La valeur calculée de $T_{1/2}^{44}$ est peu différente de la valeur $T_{1/2}^0$. Ce dernier résultat est en accord qualitatif avec les considérations précédentes montrant que, aussi longtemps que la CI reste permise sur la couche K, la valeur du coefficient de CI α_K évolue peu avec l'état de charge, en raison de la faible dépendance de la fonction d'onde électronique $1s$ au voisinage du noyau avec le degré d'ionisation des couches externes.

En revanche, les valeurs mesurées de $T_{1/2}^{45}$ et $T_{1/2}^{46}$ sont en profond désaccord avec les valeurs calculées pour un coefficient $\alpha_K = 0$ correspondant à une valeur de la charge critique $q_c = 45$.

TABLEAU 3

Charge	$T_{1/2}$ (mesurée ns)	$T_{1/2}$ (calculée ns)
0	1.49	1.49
44		1.65
45	< 2	8.0
46	2 ± 1	8.3
47	6 ± 1	8.5
48	11 ± 2	10.3

Valeur de la période $T_{1/2}$ du 1^{er} niveau du ^{125}Te en fonction de l'état de charge des ions

V.2 Conversion Interne entre états liés du cortège électronique

Le graphe de Feynmann associé à la CI (figure 6) peut s'interpréter comme l'interaction entre un photon virtuel émis par le noyau, interagissant avec un électron du cortège électronique et entraînant l'ionisation du système. Le même graphe aurait été obtenu pour décrire l'ionisation d'un système atomique par une source de photons réels. Il est bien connu que, disposant d'une source de photons réels dont l'énergie est accordable, il est possible d'ioniser l'atome si l'énergie des photons est supérieure au potentiel d'ionisation, mais également d'exciter le système électronique, si l'énergie des photons est inférieure au potentiel d'ionisation. Dans ce cas, un électron, initialement sur une orbite interne (E_i) est

promu vers une orbite plus externe (E_f) non occupée, à la condition que l'énergie du photon incident soit exactement égale à la différence des énergies $E_i - E_f = E_{if}$. En réalité, la condition "exactement égale" doit tenir compte de la largeur naturelle de l'état de trou Γ_i , augmentée de la largeur naturelle de l'état Γ_f . La condition réelle est donc :

$$E_{if} - \left(\frac{\Gamma_i + \Gamma_f}{2} \right) \leq E_\gamma \leq E_{if} + \left(\frac{\Gamma_i + \Gamma_f}{2} \right) \quad (5.3)$$

Transposé à des photons virtuels, ce raisonnement permet d'envisager un mécanisme de CI au cours duquel un électron d'une couche interne, dont l'énergie de liaison est supérieure à l'énergie de la transition nucléaire E_γ , est promu sur une orbite liée vacante. La condition (5.3) doit être modifiée pour tenir compte de l'instabilité du niveau nucléaire dans l'état initial par l'introduction d'une largeur Γ_i^n :

$$E_{if} - \left(\frac{\Gamma_i^n + \Gamma_i^a + \Gamma_f^a}{2} \right) \leq E_\gamma \leq E_{if} + \left(\frac{\Gamma_i^n + \Gamma_i^a + \Gamma_f^a}{2} \right) \quad (5.4)$$

où les indices a, et n réfèrent respectivement à la partie électronique et nucléaire, du système. Soit Γ la largeur totale $\Gamma_i^n + \Gamma_i^a + \Gamma_f^a$.

Par la suite nous appellerons ce mécanisme CI entre états atomiques liés ou BIC (pour Bound Internal conversion). On trouve aussi le nom de conversion interne résonante ou conversion interne sous le seuil pour la distinguer de la CI interne normale ou usuelle.

Dans le cas du BIC sur la couche K dans les atomes moyens et lourds la largeur Γ_i^a correspond essentiellement à la largeur radiative associée à la transition atomique $[2p \rightarrow 1s]$. Cette largeur est de 12 eV dans un atome de Te (figure 1). La largeur Γ_i^a est très supérieure à la largeur Γ_i^n associée à un état nucléaire dont la durée de vie est de l'ordre de la nanoseconde, $\Gamma_i^n \sim 10^{-6}$ eV.

Evidemment les règles de sélection sur le moment angulaire et sur la parité s'appliquent au BIC de la même manière que pour une CI usuelle.

A partir des hypothèses précédentes, il est possible de définir un coefficient de CI associé au processus BIC par la relation :

$$\alpha^{\text{BIC}} = \frac{\lambda^{\text{BIC}}}{\lambda^\gamma} = \frac{\Gamma^{\text{BIC}}}{\Gamma_\gamma} \quad (5.5)$$

λ^{BIC} est le taux de décroissance par BIC et Γ^{BIC} la largeur correspondante

λ^γ est le taux de décroissance par émission γ de l'état nucléaire excité pour une multipolarité donnée et Γ_γ la largeur partielle qui lui est associée. Par la suite nous considérerons essentiellement des transitions de type M1.

L'état initial du système $|i\rangle$ est décrit par une fonction d'onde ψ_i qui s'exprime comme un produit de la fonction d'onde nucléaire décrivant l'état excité $\chi_i(r_n)$ par une fonction d'onde $\phi_i(r)$ décrivant la partie électronique du système au moment de la CI. De la même façon l'état final du système $|f\rangle$ est décrit par une fonction d'onde ψ_f où interviennent la fonction d'onde décrivant le noyau dans son état fondamental $\chi_f(r_n)$ et la fonction d'onde

électronique de l'état final après la CI $\phi_f(r)$. Les deux états $|i\rangle$ et $|f\rangle$ sont couplés par l'intermédiaire de l'hamiltonien d'interaction noyau-électron H_{if} .

Le taux de transition par BIC s'écrit alors en fonction de la largeur totale Γ .

$$\lambda^{\text{BIC}} = \frac{\Gamma}{(E_{if} - E_\gamma)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} |\langle f | H_{if} | i \rangle|^2 \quad (5.6)$$

Pour la conversion interne usuelle le rapport

$$2\pi \frac{|\langle f | H_{if} | i \rangle|^2}{\Gamma_\gamma} \quad (5.7)$$

correspond exactement à la définition du coefficient de conversion α_i (eq. 4.11) où $\phi_f(r)$ est alors la fonction d'onde de l'électron émis dans le continuum avec une énergie E_e . Cette fonction d'onde est normalisée dans l'espace des impulsions ou dans l'espace des énergies par la condition (4.13).

Dans le cas du BIC, et par analogie avec la théorie de la conversion interne normale, on définit A_{if} qui se calcule avec les mêmes méthodes numériques que le CCI usuel :

$$A_{if} = 2\pi \frac{|\langle f | H_{if} | i \rangle|^2}{\Gamma_\gamma} \quad (5.8)$$

$\phi_f(r)$ est la fonction d'onde de l'électron promu dans un état lié n', l', κ' . La condition de normalisation de cette fonction d'onde :

$$\int_0^\infty |\phi_f(r)|^2 4\pi r^2 dr = 1$$

entraîne que A_{if} dans le cas du BIC possède les dimensions d'une énergie.

Le coefficient de conversion interne entre les états liés $|i\rangle$ et $|f\rangle$, α_{if}^{BIC} s'obtient en fonction de A_{if} [29] :

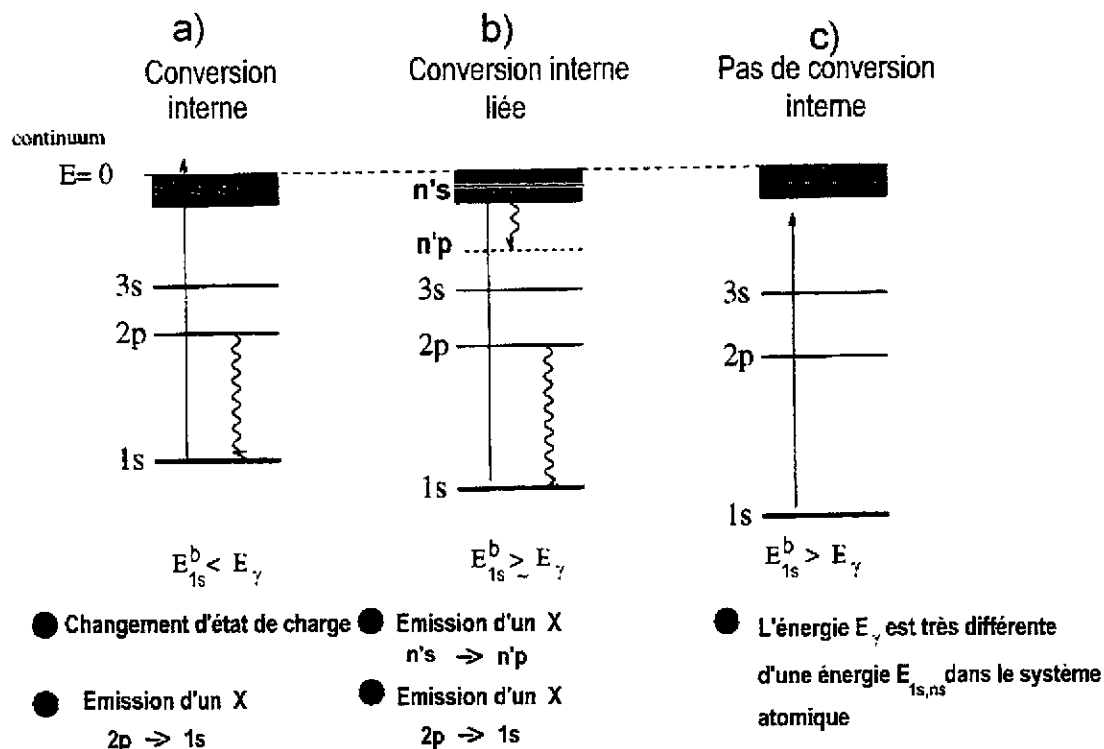


Figure 9

Représentation schématique du processus de CI sur la couche K pour une transition M1 en fonction des énergies relatives de la transition nucléaire E_γ et de la transition atomique E_γ

a) conversion interne usuelle $E_\gamma > E_{1s}^b$

b) Conversion interne liée $E_\gamma < E_{1s}^b$ et il existe dans le système atomique un état vacant

$$\text{tel que } E_{ns}^b - E_{1s}^b \sim E_\gamma \pm \frac{\Gamma}{2}$$

c) $E_\gamma < E_{1s}^b$ il n'existe pas d'état vacant pour lequel la condition de résonance puisse être vérifiée. La désexcitation du niveau nucléaire par CI est bloquée

$$\alpha_{if}^{BIC} = \frac{\Gamma}{2\pi} \times \frac{A_{if}}{\delta^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \quad (5.9)$$

où le terme δ représente le défaut de résonance entre l'énergie de la transition nucléaire et l'énergie de la transition atomique.

$$\delta = E_\gamma - E_{if} \quad (5.10)$$

La démonstration de la relation 5.9, dans le cadre d'une théorie perturbative suit point par point celle utilisée pour le calcul de P_{NEET} - paragraphe 6.1, formulation de l'effet du NEET - à condition d'échanger l'état initial et l'état final du système.

Le coefficient de conversion interne lié pour une transition nucléaire à partir d'un état $|i\rangle$ s'obtient en sommant sur tous les états $|f\rangle$ accessibles satisfaisant aux règles de sélection sur le moment angulaire équation (4.7) :

$$\alpha_i^{BIC} = \sum_f \alpha_{if}^{BIC} \quad (5.11)$$

Le nombre d'états qui interviennent dans la sommation dépend beaucoup de leur localisation par rapport au seuil d'ionisation.

Si la différence d'énergie ($E_i^b - E_\gamma$) est petite, les états accessibles sont des états caractérisés par un nombre quantique principal n' , qui est grand. Ces états sont appelés états de Rydberg. Cette situation correspond au cas b de la figure 9. La densité de ces états, $\rho(E_f) = \frac{dn'}{dE_f}$, s'obtient facilement à partir de la relation (2.6) en supposant une fonction

hydrogénoïde, où Z est remplacé par une valeur Z_{eff} qui dépend du degré d'ionisation de l'ion. Si $\rho(E_f)$ est grand, la somme discrète dans l'expression, (5.11) peut être remplacée par une intégrale sur l'énergie E_f et on retrouve, à la limite des n très grands, une valeur du coefficient de conversion α^{BIC} exactement égale à celle obtenue à partir de l'expression du coefficient de CI usuelle, dans laquelle on a utilisé l'approximation asymptotique de la fonction d'onde radiale de l'électron libre pour des énergies E_e tendant vers zéro [29].

A l'inverse si ($E_i^b - E_\gamma$) est grand, les niveaux d'énergie des états finals susceptibles d'entrer en résonance sont des niveaux caractérisés par des valeurs de n' petites. La différence d'énergie entre deux niveaux successifs ($E_{n'+1} - E_n$) est importante. Dans la sommation sur les états $|f\rangle$ de l'expression (5.11) un seul niveau est susceptible de contribuer de manière significative à la valeur du coefficient α^{BIC} et la probabilité pour trouver une condition de résonance à l'intérieur d'un intervalle d'énergie de l'ordre de Γ devient très faible. Cette situation correspond au cas c de la figure 9. En revanche, dans le cas où la condition de résonance peut être obtenue, le coefficient α^{BIC} peut prendre des valeurs très grandes, supérieures au coefficient de conversion usuelle en raison du très fort recouvrement entre les fonctions d'onde de l'état initial et de l'état final. Ceci est particulièrement vrai pour des transitions M1 qui relient des états électroniques $1s$ et $n's$.

L'analyse des résultats obtenus pour le ^{125}Te en fonction de l'état de charge (tableau 3) reflète ces différentes situations.

Pour le Te^{48+} , la configuration électronique dans l'état fondamental est $1s^2 2s^2$. La transition atomique $2s \rightarrow 1s$ étant très ralentie, la largeur Γ_i^a est proche de zéro et la largeur

$\Gamma = \Gamma_1^n + \Gamma_1^a$ est très petite. On obtient un coefficient $\alpha^{BIC} \sim 0$. Le niveau nucléaire décroît alors par émission de photons M1 et par conversion interne normale sur la couche 2s. La durée de vie mesurée correspond bien à une situation de blocage de la CI sur la couche K.

Pour le Te^{47+} . La configuration électronique de l'état fondamental est $1s^2 2s^2 2p_{1/2}^1$. La largeur radiative du trou K, estimée à partir du nombre d'électrons sur la couche 2p, est de l'ordre de 2 eV. L'étude de l'énergie des transitions $E_{if} = (E_{1s}^b - E_{n's}^b)$ ne montre aucune résonance possible avec l'énergie de la transition E_γ . Le coefficient α^{BIC} est donc voisin de zéro en accord avec le résultat expérimental et l'on retrouve une situation pour laquelle la CI sur la couche K est bloquée.

Pour le Te^{46+} la transition atomique dont l'énergie $E_{if} = (E_{1s} - E_{n's})$ est la plus voisine de l'énergie de la transition nucléaire correspond à l'excitation du niveau 6s. La différence d'énergie δ est alors de 60 eV, très supérieure à la largeur $\Gamma \sim 4$ eV. La valeur du coefficient α^{BIC} calculée à partir des relations (5.9) et (5.11) est $\alpha^{BIC} = 0,4$. Cette valeur est trop petite pour expliquer la période mesurée $T_{1/2} \sim 2$ ns. Remarquons cependant qu'une imprécision de 60 eV sur le calcul de l'énergie de transition atomique conduirait à une valeur $\alpha^{BIC} = 240$, correspondant à la résonance exacte entre l'énergie des deux systèmes électronique et nucléaire.

Pour le Te^{45+} nous nous trouvons pratiquement dans le cas où la différence d'énergie entre deux niveaux ($n's$) successifs, avec $n' \sim 19$, est du même ordre de grandeur que la largeur $\Gamma \sim 6$ eV. La relation (5.11) conduit à $\alpha^{BIC} = 5,9$, qui correspond à une valeur $T_{1/2} = 2,6$ ns du même ordre de grandeur que le résultat expérimental.

La détermination des énergies de transition atomique utilisées pour le calcul de α^{BIC} a été effectuée à partir de codes numériques Dirac-Fock prenant en compte tous les effets d'électrodynamique relativiste. La précision sur les énergies calculées est estimée à quelques eV. En revanche, dans ces calculs les ions Te sont supposés être dans leur état atomique fondamental à l'instant où a lieu la CI. Cette approximation n'est justifiée que si la durée de vie des configurations atomiques excitées à la sortie de la feuille d'épluchage est beaucoup plus courte que la vie moyenne du niveau nucléaire excité. Ceci n'est pas toujours le cas.

Dans le cas du Te^{46+} et Te^{45+} par exemple, les configurations électroniques fondamentales sont respectivement $1s^2 2s^2 2p_{1/2}^2$ et $1s^2 2s^2 2p_{1/2}^2 2p_{3/2}^1$. Certaines configurations $1s^2 2s^2 2p_{1/2}^x 2p_{3/2}^y$ avec $(x + y) = 2$ pour Te^{46} et $(x + y) = 3$ pour Te^{45+} ont des durées de vie moyenne supérieures à la nanoseconde comme le montrent les taux des transitions radiatives indiqués dans le tableau 4.

A chacune de ces configurations des électrons dans la couche 2p correspond un moment angulaire j_i différent, qui se couple au moment angulaire de l'état du trou créé en couche 1s par la CI et au moment angulaire de l'électron promu, dans un état $n's$. L'énergie des transitions possibles E_{if} entre un état initial $1s^2 2s^2 2p^2$, et un état final après conversion $1s^1 2s^2 2p^2 n's^1$, se trouve fragmentée sur un intervalle d'énergie de plusieurs centaines d'eV. Cette situation est explicitée sur la figure 10 pour une CI sur la couche K dans un ion $\text{Te}^{46+} 1s^2 2s^2 2p_{1/2}^1 2p_{3/2}^1$.

TABLEAU 4

Configuration dominante	j_i	Energie d'excitation ev	$\lambda(s^{-1})$
$1s^2 2s^2 2p_{1/2}^2$	0	0	
$1s^2 2s^2 2p_{1/2}^1 2p_{3/2}^1$	1	276,9	$1.4 \cdot 10^8 \rightarrow J = 0$
$1s^2 2s^2 2p_{1/2}^1 2p_{3/2}^1$	2	292,5	$1 \cdot 10^4 \rightarrow J = 1$
$1s^2 2s^2 2p_{3/2}^2$	2	585,3	$1.3 \cdot 10^8 \rightarrow J = 1$ $1.2 \cdot 10^8 \rightarrow J = 2$
$1s^2 2s^2 2p_{3/2}^2$	0	628,2	$3.4 \cdot 10^8 \rightarrow J = 1$

Moment angulaire total j_i et énergie d'excitation par rapport à l'état fondamental des ions Te^{46+} dans les configurations $1s^2 2s^2 2p_{1/2}^x 2p_{3/2}^y$. Le taux de décroissance par transitions radiatives λ est également porté pour chacun des états excités

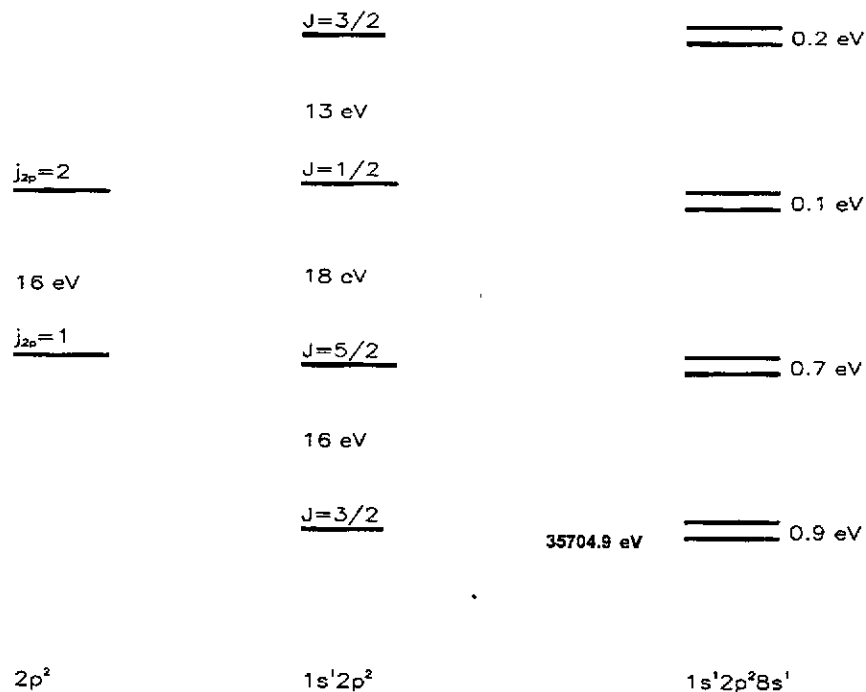


Figure 10

Effet du couplage des moments angulaires sur les énergies de transition dans le cas d'une CI liée sur la couche K d'un Te^{46+} dans les configurations initiales $1s^2 2s^2 2p_{1/2}^1 2p_{3/2}^1$ ($j_i = 1$ et $j_i = 2$). Après conversion l'électron est promu sur le niveau $8s$. Il apparaît 8 énergies de transition possibles dans un intervalle d'énergie de 47 eV. L'énergie 35704,9 eV est à comparer à l'énergie de la configuration de l'état fondamental 35439 eV et à l'énergie de la transition $E_\gamma = 35492,5$ eV [30]

Pour chaque niveau n s de l'électron dans l'état final et en tenant compte des 5 configurations métastables possibles à la sortie de la feuille d'épluchage on obtient au total 15 énergies de transition différentes qui correspondent à différentes valeurs de α_{if} .

Il apparaît alors impossible de définir, pour un état de charge donné de l'ion un coefficient α_{if}^{BIC} unique. Il faut préciser en outre la configuration atomique de l'état initial du Te, et sommer sur tous les états de spin dans l'état final qui définissent les énergies de la transition atomique E_{if} .

En conséquence, il apparaît également impossible de parler, comme nous l'avons fait jusqu'ici, de la vie moyenne $T_{1/2}$ du niveau excité pour un état de charge particulier. A chaque configuration électronique du Te^{45+} correspond une période $T_{1/2}$ du niveau excité. Les valeurs de $T_{1/2}$ peuvent être très différentes les unes des autres, et vouloir interpréter les résultats expérimentaux en terme d'une période unique pour un état de charge donné perd son sens.

Une nouvelle expérience [31], a permis de mesurer le rapport (N_{X_K}/N_γ) du nombre de rayonnements X_K ($2p \rightarrow 1s$) au nombre de rayonnements gamma de 35, 492 keV émis en vol après l'excitation par la cible de Th du ^{125}Te dans les états 45^+ et 46^+ . La distance de vol, entre 5 cm et 70 cm, correspond à des temps de vol compris entre 0,6 ns et 10 ns. En supposant une distribution statistique des électrons dans les états $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$ à la sortie de la cible et en utilisant des taux de transition atomique calculés pour chacune des configurations électroniques excitées, on peut alors calculer le rapport N_{X_K}/N_γ à partir des coefficients α_{if}^{BIC} . Les résultats expérimentaux du rapport N_X/N_γ pour les charges $Q = 45$ et 46 sont alors en excellent accord avec les résultats théoriques [32].

VI - EXCITATION NUCLEAIRE PAR UNE TRANSITION ELECTRONIQUE LIEE-LIEE.

Une transition électronique se manifeste généralement par l'émission d'un photon ou d'un électron Auger. Il existe en fait un autre type de transition dans lequel l'énergie de l'électron est directement absorbée par le noyau. Dans cette catégorie de mécanisme, on distingue la conversion électronique inverse³³ dans laquelle un électron libre est capturé sur un état lié et l'effet NEET (Nuclear Excitation by Electronic Transition) dans lequel une transition électronique se produit entre deux niveaux liés. Dans ce cas, la transition ne peut se produire que si l'énergie de la transition électronique est égale à celle de la transition nucléaire, aux largeurs près, et si les multipolarités et parités des deux transitions sont identiques. Son processus inverse, l'effet BIC (Bound Internal Conversion), a été décrit précédemment.

VI.1 L'effet NEET

Formulation

L'effet NEET est un processus du second ordre en α (constante de structure fine), proposé par Morita³⁴ en 1973. La théorie de l'excitation NEET a été étudiée par plusieurs auteurs^{35,36,37,38,39} D.P.Grechukhin et A.A.Soldatov⁴⁰ ont montré que l'expression employée par Morita pour l'Hamiltonien d'interaction électron-Noyau n'était pas correcte. En 1992 E.V.Tkalya⁴¹ a calculé la probabilité d'excitation par effet NEET à partir des principes de base

de l'électrodynamique quantique (QED). Si l'on considère que le mécanisme de l'effet NEET ne dépend pas de la façon dont l'état initial électronique a été préparé, la probabilité d'occurrence de l'effet NEET, dans le cadre de la théorie des perturbations, s'écrit:

$$P_{NEET} = (1 + \frac{\Gamma_2}{\Gamma_1}) \frac{W^2}{(\delta^2 + \left[\frac{\Gamma_1 + \Gamma_2}{2}\right]^2)} \quad (6.1)$$

où :

Γ_1 et Γ_2 sont les largeurs respectives des états électroniques initial et final.

δ est la différence d'énergie entre la transition électronique et la transition nucléaire.

$$\delta = (E_1 - E_2) - (E_\alpha - E_\beta)$$

Les différentes énergies intervenant dans la définition de δ sont explicitées figure 11.

W est l'élément de matrice d'interaction électron-noyau identique à celui intervenant dans le calcul de l'effet BIC.

$$W^2 = \left| \langle f | H_{int} | i \rangle \right|^2$$

$$W^2 = 4\pi e^2 \frac{\omega_N^{2(L+1)}}{[(2L+1)!]^2} \left\langle j_1 \frac{1}{2} L 0 \middle| j_2 \frac{1}{2} \right\rangle^2 |M_L(\omega_N)|^2 B(E(M); L)$$

où ω_N est l'énergie de la transition, $M_L(\omega_N)$ l'élément de matrice électronique et $B(E(M); L)$ le taux de transition réduit, électrique ou magnétique d'ordre L .

Dans le paragraphe suivant, nous allons établir la formule (6.1) et montrer les hypothèses qui lui sont sous-jacentes.

Dynamique de l'effet NEET

Considérons l'évolution du système avec le temps.

Si le système ATOME-NOYAU est isolé, la fonction d'onde $\Psi(t)$ vérifie l'équation d'évolution suivante :

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\Psi(t)\rangle = [H_0 + W] |\Psi(t)\rangle \quad (6.2)$$

avec :

$$H_0 = H_{atome} + H_{noyau}$$

Si le terme de couplage W est faible devant δ , un calcul de perturbation est justifié et la fonction d'onde pour un système à deux niveaux, $\Psi_{\alpha 1}$ et $\Psi_{\beta 2}$, peut s'écrire :

$$|\Psi(t)\rangle = b_{\alpha 1} |\Psi_{\alpha 1}\rangle + b_{\beta 2} |\Psi_{\beta 2}\rangle \quad (6.3)$$

où $\Psi_{\alpha 1}$ et $\Psi_{\beta 2}$ sont des états propres de H_0 .

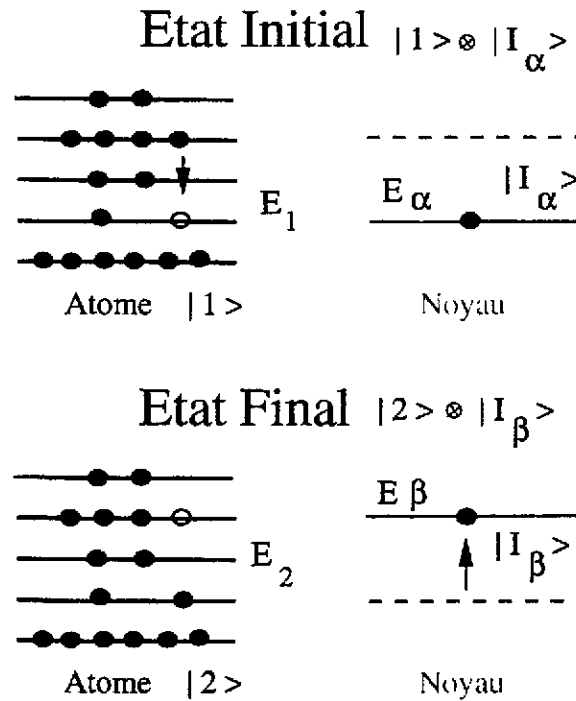


Figure 11

Le problème consiste donc à trouver $b_{\beta 2}(t)$ sachant qu'à $t=0$ le système est dans l'état $\Psi_{\alpha 1}$. Pour l'effet BIC, les équations d'évolution et le terme de couplage sont identiques, seule change la condition initiale : le système, à $t=0$, est alors dans l'état $\Psi_{\beta 2}$.

L'expression de l'hamiltonien total, $H = H_0 + W$, suppose que le système est isolé et que les états propres de H sont des états stationnaires. En toute rigueur, il faut tenir compte du couplage entre le système ATOME-NOYAU et le champ électromagnétique. L'approximation qui consiste à négliger ce terme et à considérer les états comme stationnaires, est en général bien suffisante sauf quand on s'intéresse à la décroissance de ces états. Cependant il existe une règle phénoménologique⁴² qui consiste à introduire artificiellement ce couplage. Les valeurs propres, $E_{\alpha 1}$ et $E_{\beta 2}$, de H_0 , sont alors remplacées par :

$$E_{nk}^* = E_{nk} - i\hbar \frac{\lambda_{nk}}{2} \quad (6.4)$$

avec $\lambda_{nk} = 1/\tau_{nk}$, où τ_{nk} est la période du niveau E_{nk} . Les états nucléaires ayant des temps de vie bien supérieurs aux temps de vie atomique, on peut écrire :

$$\lambda_{nk} \approx \lambda_k$$

Cette approche phénoménologique permet de retrouver le temps de vie du niveau E_{nk} . En effet la probabilité de trouver le système, à l'instant t , dans l'état φ_{nk} est alors :

$$P_{nk}(t) = \left| e^{-i(E_{nk} - i\hbar \frac{\lambda_{nk}}{2})t/\hbar} \right|^2 = e^{-\lambda_{nk}t}$$

En insérant la fonction d'onde (3) dans (2), on obtient le système d'équations suivant :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{d}{dt} b_{\alpha 1}(t) &= b_{\alpha 1}(t) E_{\alpha 1}^* + b_{\beta 2}(t) W_{\alpha 1 \beta 2} \\ i\hbar \frac{d}{dt} b_{\beta 2}(t) &= b_{\alpha 1}(t) W_{\alpha 1 \beta 2} E_{\alpha 1}^* + b_{\beta 2}(t) E_{\beta 2}^* \end{aligned} \quad (6.5)$$

où $W_{\alpha 1 \beta 2}$ est l'élément de matrice d'interaction entre les états $\Psi_{\alpha 1}$ et $\Psi_{\beta 2}$; et $E_{\alpha 1}^*, E_{\beta 2}^*$ sont définies par (4).

La résolution du système (5) revient à résoudre l'équation matricielle suivante :

$$i\hbar \frac{d}{dt} B = TB$$

Les valeurs propres, E_+ et E_- , et fonctions propres, $|\Phi^\pm\rangle$, de T sont :

$$E_\pm = \left(E_{\alpha 1} + \frac{\delta}{2} \right) - i(\Gamma_1 + \Gamma_2) \pm \sqrt{\frac{(\delta + i\frac{1}{2}(\Gamma_1 - \Gamma_2))^2}{4} + W^2}$$

$$|\Phi^\pm\rangle = \frac{-W_{\alpha 1 \beta 2}}{E_{\alpha 1} - i\hbar \frac{\Gamma_1}{2} - E_\pm} |\Psi_{\alpha 1}\rangle + |\Psi_{\beta 2}\rangle$$

• On écrit la condition initiale par

$$|\Psi(t=0)\rangle = |\Psi_{\alpha 1}\rangle = \frac{1}{K} (|\Phi^+\rangle - |\Phi^-\rangle)$$

ainsi

$$|\Psi(t)\rangle = \frac{1}{K} \left(e^{-i\frac{E_+ t}{\hbar}} |\Phi^+\rangle - e^{-i\frac{E_- t}{\hbar}} |\Phi^-\rangle \right)$$

avec :

$$K = \frac{W_{\alpha 1 \beta 2} [E_+ + E_-]}{\left(E_{\alpha 1} - i\hbar \frac{\Gamma_1}{2} - E_- \right) \left(E_{\alpha 1} - i\hbar \frac{\Gamma_1}{2} - E_+ \right)}$$

- On détermine alors $b_{\beta 2}(t) = \langle \Psi_{\beta 2} | \Psi(t) \rangle$

La probabilité, $Y(t)$, de trouver le système dans l'état $\Psi_{\beta 2}$ s'écrit :

$$Y(t) = |b_{\beta 2}(t)|^2 = \frac{W^2 \left(e^{(E_+ + E_+^*)t} + e^{(E_- + E_-^*)t} - e^{(E_+ + E_-^*)t} - e^{(E_- + E_+^*)t} \right)}{|E_+ - E_-|^2}$$

Afin que le système ne subisse pas d'oscillations de type Rabi entre les états $\Psi_{\alpha 1}$ et $\Psi_{\beta 2}$, il faut s'assurer que $\Gamma_2 \gg W$. La probabilité par unité de temps de trouver le noyau dans l'état β sera alors :

$$dP_\beta = Y(t) \times \Gamma_2 dt$$

soit :

$$P_\beta = \Gamma_2 \int_0^\infty Y(t) dt = \frac{1}{2} \frac{W^2 \Gamma_2 \left(\frac{\Gamma_1 + \Gamma_2}{2} \right)}{2 \left[\left(\frac{\Gamma_1 + \Gamma_2}{2} \right)^2 - a^2 \right] \left[\left(\frac{\Gamma_1 + \Gamma_2}{2} \right)^2 - b^2 \right]}$$

où a et b vérifie l'équation suivante :

$$\sqrt{\left(\frac{i\delta + \Gamma_2 - \Gamma_1}{2} \right)^2 + W^2} = a + ib$$

En posant $\Gamma_1 - \Gamma_2 \gg W$

$$P_\beta = \left(1 + \frac{\Gamma_2}{\Gamma_1} \right) \frac{W^2}{\left[\delta^2 + \frac{(\Gamma_1 + \Gamma_2)^2}{4} \right]} \quad (6.6)$$

ainsi la formule précédente n'est valable que si :

- $W \ll \delta$. Il s'agit là de la condition de couplage faible justifiant un calcul de perturbation. Cette condition rend invalide l'équation 1 à la résonance, c'est-à-dire si $\delta = 0$.
- $\Gamma_N \ll \Gamma_1$. Cette hypothèse est parfaitement justifiée, les durées de vie des états nucléaires étant plusieurs ordres de grandeurs plus grandes que les durées de vie atomiques.
- $\Gamma_2 \gg W$. Cette condition assure que le système n'est pas soumis aux oscillations de type Rabi⁴².
- $\Gamma_1 - \Gamma_2 \gg W$. Cette condition est fréquente, puisque l'état électronique final à une énergie plus faible et donc un nombre de voies de désexcitation plus restreint.

Les candidats à l'effet NEET sont peu nombreux. Nous allons présenter une revue expérimentale des différentes tentatives d'excitation par le NEET, nous donnerons alors les valeurs théoriques attendues de P_{NEET} calculées par E.V.Tkalya⁴³.

Mise en évidence expérimentale du NEET : Revue expérimentale

Il n'existe que quatre noyaux atomiques pour lesquels une recherche de l'effet NEET a été faite et publiée : ^{189}Os , ^{197}Au , ^{237}Np et ^{235}U . Les résultats seront comparés aux calculs présentés dans la référence (43). Nous montrerons que la situation est confuse et nécessite de nouvelles expériences.

Les analyses des résultats expérimentaux sont toutes faites avec l'hypothèse de l'indépendance de la voie d'entrée. On écrit alors :

$$\text{Taux d'excitation (s}^{-1}\text{)} = P_{NEET} * \text{Taux de formation d'une lacune atomique (s}^{-1}\text{)}$$

Soit :

$$\sigma_{NEET} = P_{NEET} \sigma_{\text{trou}} \quad (6.7)$$

Avec σ_{trou} , la section efficace de formation d'une lacune dans le cortège atomique, cette lacune pouvant se désexciter par effet NEET avec la probabilité P_{NEET} . La valeur de σ_{NEET} va dépendre du type de la particule incidente et de son énergie. A titre d'exemple, le tableau suivant présente quelques valeurs de la section efficace expérimentale de formation d'un trou dans la couche K d'un atome d'or :

TABLEAU 5

γ	$\sigma_K(E_\gamma = 100\text{keV}) = 2.05 \cdot 10^6 \text{ barns}$	
électron	$\sigma_K(E_e = 500\text{keV}) = 10 \text{ barns}$	$\sigma_K(E_e = 1\text{MeV}) \approx 10 \text{ barns}$
proton	$\sigma_K(E_p = 1\text{MeV}) = 0.18 \mu \text{ barn}$	$\sigma_K(E_p = 8\text{MeV}) = 0.295 \text{ barn}$
α	$\sigma_K(E_\alpha = 1\text{MeV}) = 76 \text{ nbarns}$	$\sigma_K(E_\alpha = 10\text{MeV}) = 0.045 \text{ barn}$

^{197}Au

^{197}Au possède un premier niveau excité, $\frac{1}{2}^+$, à 77.345 keV, de demi-vie 1.9 ns. La transition entre cet état et l'état fondamental est une transition magnétique d'ordre 1. La probabilité de transition réduite vaut $B(M1; 3/2^+ \rightarrow 1/2^+) = 3.05 \cdot 10^{-7} \text{ fm}^2$, soit $0.00409 \text{ W.u.}^{44}$.

Dans l'atome d'or, la transition $3s_{1/2} \rightarrow 1s_{1/2}$ (figure 12) est assez proche en énergie de la transition nucléaire, $\delta = 50 \text{ eV}$. Le calcul de l'élément de matrice d'interaction⁴³ vaut $W^2 = 3.07 \cdot 10^{-4} \text{ eV}^2$ soit une valeur de $P_{NEET} = 1.3 \cdot 10^{-7}$.

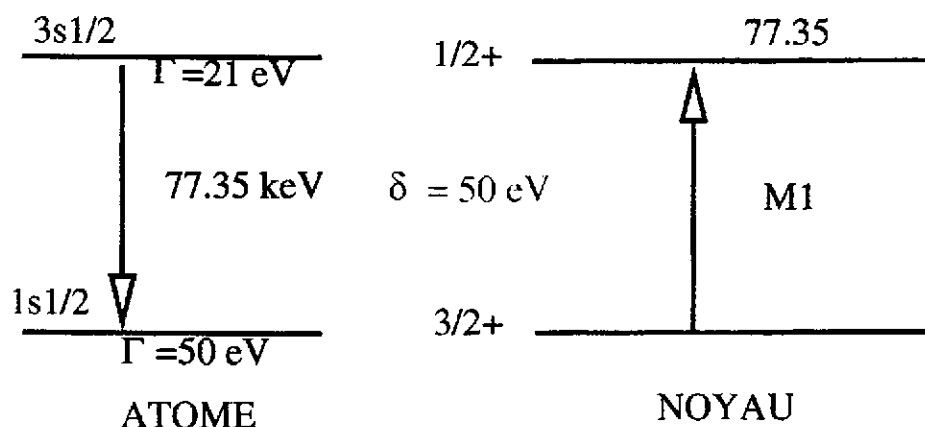


Figure 12
Schéma partiel de l'atome d'or et de ^{197}Au

Une expérience⁴⁵ a été effectuée dans le but d'exciter le niveau nucléaire à 77.345 keV d'énergie d'excitation de l' ^{197}Au . Pour cela une feuille d'or de 10 μm a été bombardée par des électrons de 100 keV. Un spectromètre sélectionnait les électrons de 63 keV, émis majoritairement lors de la conversion du niveau nucléaire sur la couche L. Un système de déflecteur à haute fréquence permettait de ne détecter que les électrons retardés. Une expérience effectuée avec une cible de platine a permis de vérifier que le signal observé avec la cible d'or, provient bien de la désexcitation de l'isomère de l' ^{197}Au .

La valeur mesurée de la section efficace d'excitation du premier niveau, est de $\sigma_{\text{exc}} = 9.9 \cdot 10^{-28} \text{ cm}^2$. En comparant cette valeur à la section efficace de diffusion inélastique d'électrons, estimée approximativement à $4.1 \cdot 10^{-32} \text{ cm}^2$ ⁴³, les auteurs attribuent le signal observé à l'effet NEET. Utilisant la valeur de 4.5 barns pour la section efficace d'ionisation de la couche K, ils en déduisent une valeur $P_{\text{NEET}} = (2.2 \pm 1.8) \cdot 10^{-4}$, trois ordres de grandeurs plus grande que la valeur attendue!

^{237}Np

Le ^{237}Np a un état excité $7/2^-$, à 102.96 keV d'énergie d'excitation. La transition nucléaire du fondamental, $5/2^+$, vers l'état $7/2^-$, est une transition électrique d'ordre 1 dont le taux de transition nucléaire réduit, $B(E1, 5/2^+ \rightarrow 7/2^-)$, vaut $0.769 \cdot 10^{-7} \text{ fm}^2$, soit $3.2 \cdot 10^{-6} \text{ W.u.}$ ⁴⁶. Dans l'atome de Neptunium la transition $2p_{3/2} \rightarrow 1s_{1/2}$ (figure 13) a une énergie de 101.068 keV. Le désaccord entre la transition nucléaire et la transition électronique est $\delta = 1.8926 \text{ keV}$. La valeur de l'élément de matrice d'interaction est $W^2(2p_{3/2} \rightarrow 1s_{1/2}) = 9.61 \cdot 10^{-6} \text{ eV}^2$. La probabilité d'avoir un effet NEET est alors faible et vaut : $P_{\text{NEET}}(2p_{3/2} \rightarrow 1s_{1/2}) = 2.86 \cdot 10^{-12}$.

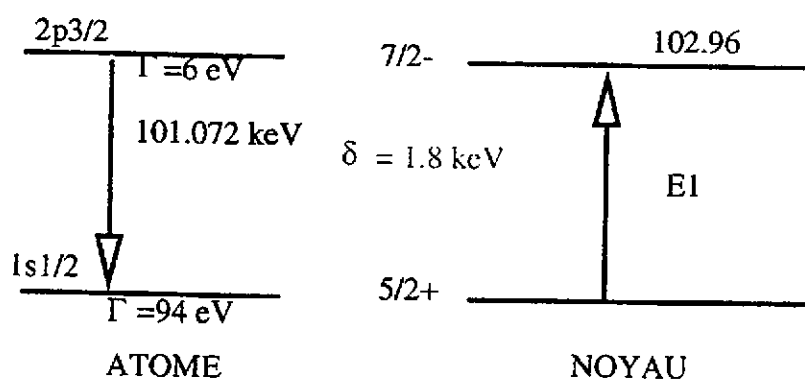


Figure 13

Schéma partiel de l'atome de Neptunium et de ^{237}Np

Afin d'exciter le niveau nucléaire à 102.96 keV, le ^{237}Np a été irradié⁴⁷ par une source intense de ^{57}Co , de 4.7 mCi. Les raies γ provenant de la source, d'énergie 122 keV et 136 keV, étaient utilisées pour ioniser la couche K de l'atome de neptunium (119 keV). Parmi les raies γ émises lors de la désexcitation du niveau à 103 keV du ^{237}Np , la plus intense, d'énergie 60 keV, était choisie pour caractériser l'excitation du niveau. Dans la région proche de 60 keV aucun pic n'a été observé. Par contre la dérivée seconde de l'histogramme indique la présence d'un pic à 59.5 keV avec une largeur compatible avec celle d'un photopic. Les auteurs ont vérifié, en utilisant une cible de ^{238}U , que le pic ne correspondait pas à une diffusion inélastique des raies du Cobalt. En estimant les différents processus pouvant mener à l'observation d'un pic à 60 keV (coïncidence fortuite, empilement, fluorescence nucléaire), ils en déduisent une probabilité d'excitation NEET de $P = (2.1 \pm 0.6)10^{-4}$, 10^8 fois plus grande que la valeur attendue !

^{189}Os

Le ^{189}Os a un état excité de spin $5/2^-$, à 69.537 keV. La transition de l'état fondamental vers ce niveau, est une transition (M1+E2). Les probabilités de transition réduites valent $B(\text{M1}; 3/2^- \rightarrow 5/2^-) = 5.45 \cdot 10^{-7} \text{ fm}^2$ et $B(\text{E2}; 3/2^- \rightarrow 5/2^-) = 69.84 \text{ fm}^4$ ⁴⁸.

Quand un électron K est éjecté de l'atome d'Osmium, la désexcitation atomique peut générer une excitation du niveau nucléaire. En effet, dans l'atome d'Osmium la transition $3s_{1/2} \rightarrow 1s_{1/2}$ (figure 14) a une énergie 70.732 keV. La probabilité d'avoir un effet NEET est de: $P_{\text{NEET}}(3s_{1/2} \rightarrow 1s_{1/2}) = 3.4 \cdot 10^{-10}$.

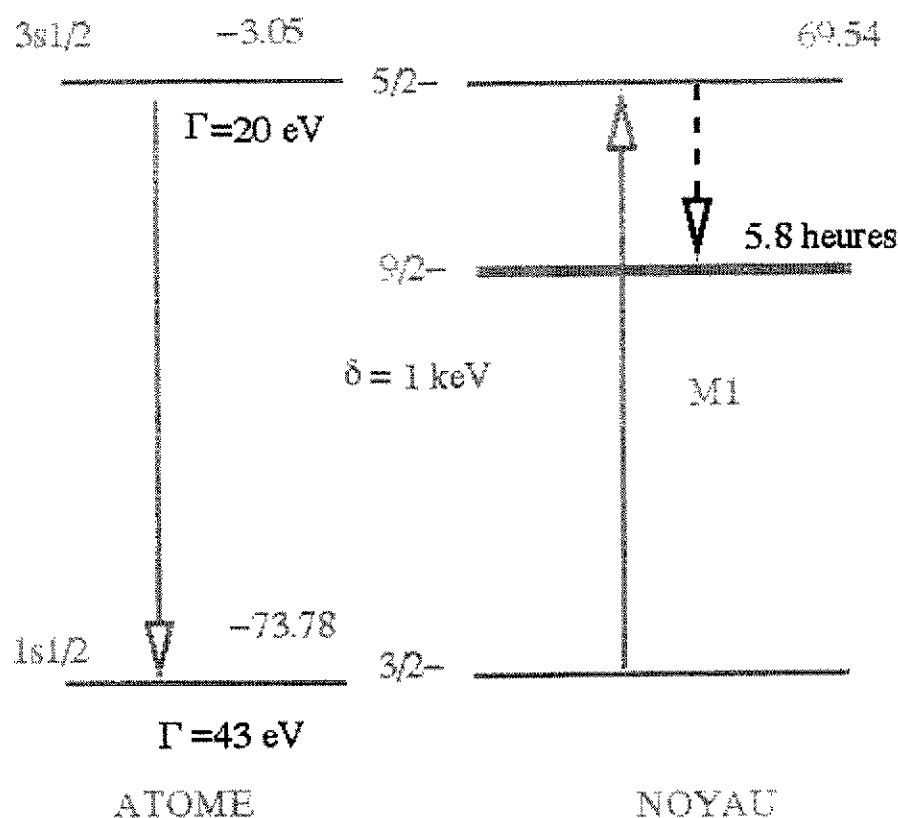


Figure 14

Schéma partiel de l'atome d'osmium et de ^{189}Os

Il existe plusieurs tentatives d'excitation du niveau $5/2^-$ de l' ^{189}Os . Elles sont toutes basées sur l'observation de la décroissance du niveau $9/2^-$ situé à 30.814 keV, de période 5.8 heures. Toutefois, à ce jour, la transition entre les niveaux $5/2^-$ et $9/2^-$ n'a pas été observée. Le calcul du rapport d'embranchement dépend du degré d'interdiction K entre les deux niveaux et celui-ci ne peut être qu'estimé. La valeur généralement utilisée dans les analyses est $1.2 \cdot 10^{-3}$. Le tableau suivant récapitule les différentes valeurs de la probabilité NEET ainsi que les sections efficaces obtenues dans les différentes expériences.

TABLEAU 6

P_{NEET}	σ_{NEET}	Sonde
10^{-6}	6.2 μb	Electrons ¹⁷
$1.7 \pm 0.2 \cdot 10^{-7}$	1.05 μb	Electrons ¹⁸
$4.3 \pm 0.2 \cdot 10^{-8}$	43 μb	Photons ¹⁹
$4.3 \pm 0.2 \cdot 10^{-8}$	43 μb	Photons ²⁰
$5.7 \pm 1.7 \cdot 10^{-9}$	40 μb	Photons ²¹
$2.0 \pm 1.4 \cdot 10^{-8}$	6.2 μb	Photons ²²

Les deux premières mesures sont obtenues en utilisant des électrons d'énergie inférieure à 100 keV, pour générer une lacune dans la couche K de l'atome d'Osmium. Sato et al. ont

montré⁵⁵ que l'excitation directe du niveau $5/2^-$ par diffusion inélastique d'électrons, en utilisant un formalisme de type DWBA, expliquait le résultat obtenu. En ce qui concerne les quatre dernières mesures Lakosi et al⁵⁴ ont montré que ces différentes expériences ne peuvent pas être considérées comme des preuves expérimentales du NEET dans l'¹⁸⁹Os car l'absorption nucléaire résonnante d'un photon peut être responsable de l'excitation de l'isomère.

Ainsi pour les différents noyaux passés en revue, les résultats expérimentaux sont ambigus et il n'y a pas de réelles preuves expérimentales d'excitation d'un niveau nucléaire par effet NEET. Les expériences nécessitent toutes d'être refaites avec des dispositifs expérimentaux permettant d'effectuer les mesures de façon exclusive afin d'éliminer l'excitation directe du niveau nucléaire par la sonde. Il faudrait :

- soit mesurer en coïncidence avec le rayonnement émis lors de la désexcitation de l'état nucléaire, l'émission d'un rayonnement X, ou électronique, provenant de la réorganisation du cortège atomique qui suit la transition NEET.
- soit mesurer un effet sur la population des états nucléaires excités en fonction de l'état de charge du noyau.

²³⁵U

Le cas de l'²³⁵U est différent de ceux présentés précédemment. En effet, il possède un niveau de très basse énergie à 76.8 eV, de spin et parité $1/2^+$. Cet état excité décroît avec une période de 26.8 minutes vers l'état fondamental, de spin et parité $7/2^-$ par une transition électrique d'ordre 3. La décroissance s'effectue par conversion interne sur les couches $6p_{1/2}$, $6p_{3/2}$, $6d$. Le coefficient de conversion interne α a été estimé⁵⁶ à $2 \cdot 10^{20}$ rendant la photoexcitation directe de l'isomère très improbable. Le taux de transition réduit, $B(E3)$ vaut $7.2 \cdot 10^{-2} \text{ W.u.}$

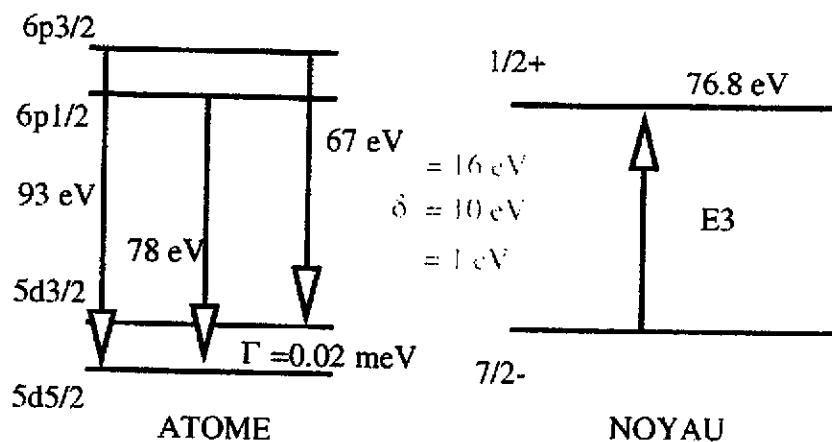


Figure 15

Schéma partiel de l'atome d'uranium et de ²³⁵U

Dans l'atome d'Uranium les transitions $6p_{3/2} \rightarrow 5d_{5/2}$, $6p_{3/2} \rightarrow 5d_{3/2}$ et $6p_{1/2} \rightarrow 5d_{5/2}$ (figure 15) ont une énergie très proche de la transition nucléaire ($\delta \approx 16$ eV, 10 eV et 1 eV). Cependant la faible largeur des niveaux, quelques 10^{-3} meV, ainsi que la valeur de l'élément de matrice d'interaction ($W^2 \approx 10^{-18}$ eV²) font que la probabilité P_{NEET} est extrêmement faible :

$$P_{\text{NEET}} \approx 10^{-18}$$

La réalisation expérimentale du processus NEET pour de telles probabilités, suppose que l'on place un très grand nombre d'atomes dans un état électronique excité. On peut alors espérer qu'une partie des relaxations électroniques se produira vers les degrés de liberté nucléaires. A cette fin, l'utilisation d'un plasma chaud semble bien adapté. Pendant la durée de vie du plasma un grand nombre de transitions électroniques est généré. La mise en évidence du phénomène suppose que les températures atteintes sont suffisantes pour exciter le niveau nucléaire. De plus, afin de dénombrer les noyaux excités, ceux-ci doivent survivre assez longtemps pour être mesurés. En effet, pendant toute la durée de vie du plasma, celui-ci rayonne fortement rendant très délicate une mesure du taux d'excitation nucléaire. Ceci ne peut alors être réalisé que si l'état nucléaire est un état isomérique de vie longue. Les deux conditions, faible énergie d'excitation et grande durée de vie, sont réalisées dans le cas du premier état excité de ^{235}U .

VI.2 L'effet NEET dans les plasmas

Excitation de $^{235\text{m}}\text{U}$ dans un plasma

L'excitation de $^{235\text{m}}\text{U}$ dans un plasma d'uranium, créé par un faisceau laser, semble avoir été mise en évidence⁵⁷ par une équipe de l'université d'Osaka. Les auteurs attribuent cette excitation à l'effet NEET. Dans cette expérience un laser CO_2 , d'énergie 1 Joule et de durée d'impulsion 100 ns, vient éclairer une cible métallique d'uranium naturel (0.7 % ^{235}U) à une fréquence de 0.5 hertz. Le plasma créé se détend et est défléchi par un champ électrique externe puis collecté sur une plaque en acier inoxydable. Après 100 tirs laser, le collecteur est placé devant un détecteur d'électrons. La figure 16 présente la courbe de décroissance du nombre d'électrons mesurés en fonction du temps. Trois composantes temporelles sont extraites: une composante rapide de demi-vie 1.0 ± 0.1 min, une composante lente de 25.7 ± 0.4 min et une composante indépendante du temps. A partir du taux de comptage de la composante lente et en prenant en compte l'efficacité du système de comptage, le taux de réaction a pu être estimé à partir de la relation suivante :

$$\langle \sigma_{\text{exc}} v \rangle = \frac{N_{\text{iso}}}{n_e N_{^{235}\text{U}} V \Delta t} \quad (6.8)$$

avec $N_{^{235}\text{U}}$ le nombre d'atome d' ^{235}U égal au nombre d'atomes d'uranium collectés N_{U} divisé par p_{235} , la fraction d' ^{235}U présente dans l'uranium naturel; n_e est la densité électronique ; Δt la durée du plasma , V le volume du plasma et N_{iso} le nombre d'isomères à $t=0$, estimé à 10^3 isomères par impulsion laser.

$\langle \sigma_{\text{exc}} v \rangle$, le taux de réaction, est défini comme suit :

$$\langle \sigma_{exc} v \rangle = \frac{1}{N_U n_e} \int d^3 v_U d^3 v_e \sigma(|v_e - v_U|) n_e(v_e) N_U(v_U) \quad (6.9)$$

où v_e est la vitesse des électrons et v_U la vitesse des ions d' ^{235}U et $N_U(v_U)$ le nombre d'atomes d'uranium par cm^3 ayant la vitesse v_U .

A l'équilibre thermodynamique les distributions $n(v)$ suivent la distribution de Maxwell Boltzmann :

$$n(v) = n \left(\frac{1}{2\pi kT} \right)^{3/2} e^{-\frac{mv^2}{2kT}}$$

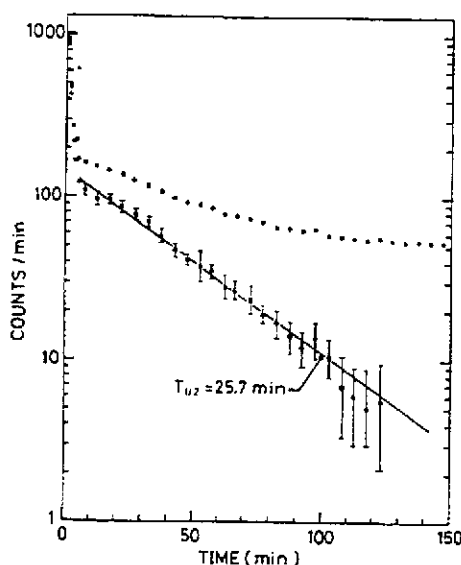


Figure 16

Nombre d'électrons mesurés par minute après collection d'un plasma d'uranium²⁵

Une valeur de $\langle \sigma_{exc} v \rangle = 1.4 \cdot 10^{-20} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ est alors obtenue par l'équipe japonaise en utilisant les paramètres suivant : $V = 10^{-6} \text{ cm}^3$, $\Delta t = 100 \text{ ns}$, $n_e = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et $N_U = n_e$. Toutefois cette dernière hypothèse ne semble pas justifiée. En effet pour cette expérience la température du plasma a été estimée à 100 eV dans la référence⁵⁸. A cette température la distribution des états de charge est centrée sur 23^+ (figure 2) et la densité N_U vaut alors $N_U = n_e/23$. Dans ce cas le taux de réaction prend la valeur $\langle \sigma_{exc} v \rangle = 3.22 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$ et le taux d'excitation par noyau d' ^{235}U , défini par $\lambda_{exc} = n_e \langle \sigma_{exc} v \rangle$, vaut $\lambda_{exc} = 2 \text{ s}^{-1}$. Dans son article, l'équipe japonaise attribue ce taux d'excitation à l'effet NEET.

Ce taux de formation élevé a été remis en question par un groupe de l'institut Kurchatov de Moscou. Arutyunyan et al⁵⁸ ont tenté de reproduire ce résultat en se plaçant d'emblée dans des meilleures conditions (en utilisant de ^{235}U enrichi à 6 %) mais sans succès. Les conditions expérimentales étaient similaires à celles de l'expérience Japonaise (laser CO_2 de 5

Joules et de durée d'impulsion 200ns). Ils estiment que la section efficace d'excitation de l'isomère est alors inférieure à 10^{-32} cm^2 . Le taux d'excitation déduit est au minimum de trois ordres de grandeur plus faible que celui obtenu par l'équipe d'Osaka.

Arutyunyan et al. ont par ailleurs réalisé une seconde expérience⁵⁸ à partir d'une cible pure d' ^{235}U . Le plasma était créé par un faisceau d'électrons d'énergie 500 keV de durée d'impulsion de 30 ns. La température atteinte était de 20 eV pour une densité matière de $1.6 \cdot 10^{-3} \text{ g/cm}^3$. La section efficace d'excitation de l'isomère, σ_{exc} , mesurée a été estimée à 10^{-32} - 10^{-31} cm^2 . Cette valeur a été extraite de la relation suivante:

$$\xi = \frac{N^{\text{isomère}}}{N_{\text{U}^{235}}} \equiv n_e(T) \Delta t \times e^{-\frac{\Delta E}{T}} v_e \sigma_{\text{exc}}$$

où $n_e(T)$ est la densité électronique, Δt la durée de l'impulsion, $\Delta E = 76.8 \text{ eV}$ l'énergie de l'état isomérique, v_e la vitesse des électrons du continuum. Toutefois cette expression doit être utilisée avec précaution¹². En effet, elle suppose que l'excitation nucléaire est générée par des collisions entre le noyau et les électrons du plasma. Or dans ce type d'expérience, les électrons du faisceau peuvent exciter l'état isomérique, ce qui n'est pas pris en compte par cette formule. Il est alors préférable d'estimer le taux de transition par noyau, $\lambda_{\text{exc}} = \xi / \Delta t = 3 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$, qui est indépendant du mécanisme d'excitation. Cette valeur est à comparer à la valeur de $\lambda_{\text{ee}} = 3 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ obtenue¹² en supposant que le processus de diffusion inélastique est le seul processus d'excitation.

Plus récemment, Bounds et al⁶⁰ ont cherché à exciter $^{235\text{m}}\text{U}$. Une vapeur d'uranium enrichi à 93 % en ^{235}U , était éclairée par un laser UV de forte intensité (10^{14} W/cm^2 et 10^{15} W/cm^2). Une limite supérieure, $\xi < 4.0 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$, de la probabilité d'excitation de l'isomère fut obtenue.

Pour clarifier la situation plusieurs expériences sont actuellement en préparation. L'enjeu est important car ^{235}U est un candidat particulièrement intéressant pour mettre en évidence l'effet NEET. En effet pour des températures de plasma de quelques centaines d'eV, nous montrerons que le processus NEET est le processus dominant devant la photo excitation, la diffusion inélastique ou le processus d'excitation nucléaire par capture électronique qui est le processus inverse de la conversion interne. Avant cela nous donnerons quelques notions sur les plasmas ainsi que sur l'interaction laser-plasma. Puis nous décrirons très brièvement la structure d'un atome plongé dans un plasma chaud et peu dense. Ceci nous permettra de présenter un calcul du taux de transition NEET pour ^{235}U dans le plan densité température. Nous comparerons ces taux à ceux des différents processus intervenant dans l'excitation de $^{235\text{m}}\text{U}$.

Les plasmas formés par laser

Dans ce qui suit nous présentons très brièvement les caractéristiques essentielles des plasmas générés par laser. L'objectif est d'introduire les concepts nécessaires à la suite de ce cours.

- Plasma

Un plasma est un gaz de particules chargées dans lequel l'énergie potentielle d'une particule due à son plus proche voisin est beaucoup plus petite que son énergie cinétique. Plus de 99 % de l'univers connu est sous la forme de plasma. Plusieurs espèces de particules chargées composent un plasma. Dans ce cours nous ne considérerons que les plasmas globalement neutres composés d'électrons et d'une seule espèce d'ions ($m_e \ll m_{ion}$).

Les plasmas se comportent de manière très différente selon que les particules qui le constituent peuvent être considérées comme fortement ou faiblement couplées. La quantité $\Lambda = n_e \lambda_D^3$ permet de quantifier le couplage des particules du plasma. La longueur de Debye est alors définie par la relation :

$$\lambda_D \approx 740 \sqrt{\frac{T(eV)}{n_e(cm^{-3})}} \quad (6.10)$$

Au-delà d'une distance λ_D le potentiel coulombien d'une charge Q n'est plus ressenti par les autres particules. Les plasmas auxquels nous nous intéressons sont très faiblement couplés $\Lambda \gg 1$.

Dans la sphère de rayon λ_D les différentes particules subissent des collisions entre elles. On peut définir une fréquence de collisions pour les électrons, ω_e , et pour les ions ω_i . La fréquence propre d'un plasma est alors définie par :

$$\omega_p(s^{-1}) = (\omega_e^2 + \omega_i^2)^{1/2} \approx 2\pi 9000 \sqrt{n_e(cm^{-3})} \quad (6.11)$$

Cette notion de fréquence propre est importante car une onde transverse, par exemple une onde laser, de fréquence ω se propageant dans un plasma de fréquence propre ω_p vérifiera la relation de dispersion suivante :

$$\omega^2 = \omega_p^2 + k^2 c^2 \quad (6.12)$$

Cette relation traduit la polarisation du milieu. Ainsi dans un tel milieu ω est supérieur à ω_p . Comme la fréquence propre dépend de la densité, au-delà d'une densité, appelée densité de coupure, l'onde électromagnétique ne peut plus se propager.

A coté des phénomènes collisionnels, des modes collectifs d'oscillation peuvent apparaître : ondes acoustiques, ondes de Langmuir (ondes longitudinales). Ces ondes joueront un rôle important dans le cas d'un plasma créé par laser.

INTERACTION LASER PLASMA

La physique des plasmas créés par laser couvre un domaine très étendu en densité et température, et ceci sur une échelle en temps importante. Typiquement les densités de électronique atteintes s'étendent de quelques 10^{17} électrons/cm³ à 10^{26} électrons/cm³, pour des températures allant de 10000 K à quelques 10^7 K. Les longueurs d'onde des lasers les plus couramment utilisées vont de l'infrarouge ($\lambda = 10.6 \mu m$ pour un CO₂) à l'UV ($\lambda = 0.25 \mu m$ pour un KrF). Les principaux paramètres qui caractérisent le rayonnement laser et son

interaction avec une cible solide sont : l'intensité, I en Watt/cm^2 (ou éclairement), la longueur d'onde λ et la durée de l'impulsion laser. Dans le cadre de ce cours :

$$I \approx 10^{11} - 10^{14} \text{ W/cm}^2$$

$$\lambda \approx 0.25 - 10.6 \mu\text{m}$$

$$\Delta t \approx \text{ns}$$

Lorsqu'un faisceau laser interagit avec une cible solide, la matière s'ionise très rapidement, sur un temps très inférieur à la picoseconde, de sorte que l'onde laser se propage dans le plasma qu'elle vient de former. L'origine des premiers électrons est due à un mécanisme multiphotonique⁶¹. L'énergie des photons du laser est toujours inférieure au potentiel d'ionisation de l'atome neutre et, en l'absence de collisions, seule une absorption de plusieurs photons peut créer des ions multichargés.

Le plasma ainsi formé se détend dans le vide perpendiculairement à la cible, générant dans la cible, par réaction, une pression pouvant atteindre plusieurs Megabars. Si on se restreint à une incidence normale, le laser rencontre au cours de sa propagation des densités qui sont croissantes. Lorsque la condition $\omega = \omega_p$ est satisfaite, c'est à dire à la densité critique, la lumière laser est alors réfléchi. L'expression de cette densité critique en fonction de la longueur d'onde laser, λ , est :

$$n_c (\text{cm}^{-3}) = \frac{1.11 \cdot 10^{21}}{\lambda^2 (\mu\text{m})} \quad (6.13)$$

La région $n_e < n_c$, appelée la couronne, est la zone dans laquelle prend place l'interaction de l'onde laser avec le plasma.

Deux types de mécanismes interviennent dans le couplage laser-plasma : un mécanisme individuel dans lequel domine l'absorption collisionnelle et un mécanisme collectif.

- L'absorption collisionnelle

Lorsqu'un électron oscille sous l'action du champ électrique laser, il peut voir cette énergie d'oscillation transformée en énergie cinétique à l'occasion d'une collision avec un ion. L'absorption est dite collisionnelle et l'énergie laser est directement thermalisée par le processus d'absorption. Le processus microscopique responsable de cette absorption est le mécanisme de Bremsstrahlung inverse dans lequel un photon de l'onde laser est absorbé par un électron dans le champ coulombien d'un ion. Comme l'absorption collisionnelle dépend fortement de la densité, elle a lieu principalement au voisinage de la densité critique.

Lorsque l'intensité laser I (Watt/cm^2) augmente, la température électronique croît et la fréquence de collisions ν_{ei} diminue ($\nu_{ei} \propto Z n_e / T_e^{3/2}$) amenant une baisse de l'absorption collisionnelle. Ainsi l'absorption collisionnelle est d'autant moins efficace que l'intensité augmente. Pour des intensités élevées, un mécanisme nouveau apparaît : l'absorption résonante.

- L'absorption résonante

Il s'agit d'un phénomène collectif. Le champ électromagnétique laser excite un ou plusieurs modes de vibrations du plasma. L'onde électromagnétique transverse est alors convertie en une onde de Langmuir (onde longitudinale). La thermalisation de cette énergie n'est pas complète et la création d'électrons hors équilibre est possible. Ce mécanisme collectif ne se produit que sous condition : d'incidence oblique. En effet, dans ce cas la composante du champ électrique parallèle au plan d'incidence peut voir un gradient de densité et ainsi déplacer un ensemble d'électrons d'une zone moins dense à une zone plus dense. Cette composante du champ peut alors exciter de façon résonante une onde de Langmuir. Ainsi pour éviter cette génération d'électrons chauds, le champ électrique de l'onde laser doit avoir une composante parallèle au plan d'incidence nulle. On parle alors de polarisation S.

QUELQUES ORDRES DE GRANDEUR

Quand on dimensionne une expérience il est toujours utile de connaître quelques formules permettant de prédire les ordres de grandeurs des quantités importantes, comme: la température, l'état de charge des ions, la quantité de matière ablatée ou encore la vitesse des ions. Dans le cas de l'interaction directe d'un laser avec une cible, nous avons déjà mentionné que les paramètres pertinents sont l'intensité laser, la longueur d'onde et la durée d'impulsion. Les formules^{62,63} présentées ci-dessous sont à manier avec précaution et ne permettent d'obtenir que l'ordre de grandeur des quantités désirées.

- La température

$$T_e (\text{eV}) = 5.210^{-6} A^{1/5} [\lambda^2 (\mu\text{m}) I (\text{W} / \text{cm}^2)]^{3/5} \quad (6.14)$$

En prenant $A=235$, $\lambda = 1\mu\text{m}$, $I = 10^{12} \text{ W/cm}^2$ on obtient $T_e = 250 \text{ eV}$.

Il s'agit là de la température atteinte par la zone la plus chaude.

- Charge

$$Q = \frac{2}{3} [AT_e]^{1/3}$$

Pour $A = 235$ et $T_e = 250 \text{ eV}$ on a $Q \approx 25^+$

- Vitesse des ions

$$C_s (\text{cm} / \text{s}) = 3.10^7 \sqrt{\frac{QT_e (\text{keV})}{A}} \quad (6.15)$$

Pour $A=235$ et $T_e = 0.250 \text{ keV}$ $C_s \approx 0.5 \cdot 10^7 \text{ cm/s}$

- Quantité de matière éjectée

$$\frac{dm}{dt} (g / s / cm^2) = 1.3810^5 \frac{I(W / cm^2)}{10^{14}} \lambda^{-4/3} \left[\frac{A}{2Q} \right]^{2/3} \quad (6.16)$$

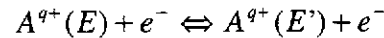
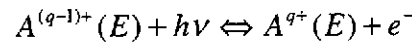
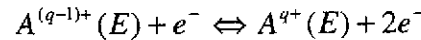
On obtient 10^{17} atomes/ns/mm².

Ces formules montrent que pour un éclaircissement de quelques 10^{12} W/cm², il est possible d'atteindre des températures qui semblent suffisantes pour peupler l'état à 76.8 eV de l'²³⁵U.

Les quantités de matière mises en jeu sont là aussi suffisante pour concevoir une expérience. Toutefois dans le cas de l'effet NEET, la structure atomique des ions dans le plasma joue un rôle très important et nécessite d'être connue.

Transitions atomiques dans un plasma

Dans les plasmas deux types de mécanismes d'excitation et d'ionisation atomiques ont lieu : les processus **collisionnels** et **radiatifs**. Ceux-ci sont schématisés par les équations suivantes :



où $A^{q+}(E)$ est le nombre d'ions A, ionisé q fois, à l'énergie E. La double flèche \Leftrightarrow symbolise un processus et son inverse.

Dans le cadre du modèle **collisionnel-radiatif**⁶⁴, il faut résoudre, en toute généralité, le système d'équations couplées suivant :

$$\frac{dA_i^q}{dt} = \sum_{q'} \sum_j A_j^{q'} \alpha_{(q',j) \rightarrow (q,i)} - A_i^q \sum_{q'} \sum_k \beta_{(q,i) \rightarrow (q',k)}$$

A_i^{q+} est le nombre d'ions A, ionisé q fois, dans l'état i. α et β représentent, respectivement, le taux de peuplement et le taux de dépeuplement. La résolution de ces équations est en général impossible à calculer compte tenu du nombre considérable de niveaux et d'états de charge mis en cause. On a alors recours à des modèles décrivant des états d'équilibre tels que l'équilibre thermodynamique local (ETL) et l'équilibre coronal (EC).

i L'Equilibre Thermodynamique Local

L'ETL est l'équilibre atteint dans des régions de haute densité où l'on suppose que les processus collisionnels sont suffisamment nombreux pour assurer une thermalisation du système sans avoir recours aux processus radiatifs. La distribution obéit à la statistique de Saha-Boltzmann⁶⁵ : et les distributions de charge peuvent alors être obtenues à partir de l'équation de Saha définie chapitre 1. La statistique de Saha-Boltzmann est particulièrement

utile pour évaluer les taux de transition d'un processus. Dans un plasma créé par laser l'équilibre thermodynamique local se rencontre à l'arrière de la zone définie par la densité critique.

ii L'Equilibre Coronal

L'équilibre coronal s'obtient dans des conditions opposées à celles rencontrées à l'ETL. Pour de très faibles densités le processus de recombinaison collisionnelle, proportionnel à n_e^2 , devient négligeable devant le processus de recombinaison radiative. Dans le cadre de ce modèle on suppose négligeable le nombre d'états excités et la population des niveaux fondamentaux est simplement régie par l'ionisation collisionnelle associée à la recombinaison radiative. Cet équilibre intervient à l'extrémité de la couronne du plasma qui se détend.

iii L'Equilibre Collisionnel-Radiatif

Pour des densités intermédiaires, on a alors recours à l'équilibre collisionnel-radiatif. Afin de pouvoir effectuer les calculs des différentes populations, on découple le calcul des populations des niveaux excités, des niveaux fondamentaux. Les populations des niveaux excités sont alors calculées de façon stationnaire tandis que les populations des niveaux fondamentaux sont obtenues en résolvant les équations d'évolution. Pour des durées d'interaction laser plasma supérieures à la picoseconde cette approximation est justifiée car le système a le temps d'atteindre cet équilibre.

iv Effet de température

Lorsqu'un atome est partiellement épluché de ses électrons et devient un ion de charge q^+ , un grand nombre de configurations est alors accessibles. Les électrons se répartissent sur les différentes couches ouvertes, l'état fondamental ayant l'énergie la plus basse. L'énergie d'une transition électronique dépend alors fortement des configurations initiale et finale de l'atome qui subit cette transition, c'est à dire de la répartition des électrons sur les différentes couches accessibles. Dans un plasma les taux de transitions entre les différentes configurations vont être considérablement accélérés par différents effets : l'effet Stark et les collisions électroniques. Dans le cas d'une transition NEET, la transition électronique et la transition nucléaire ont lieu dans le même référentiel, l'effet Doppler n'est donc pas à prendre en compte. La présence d'autres ions et électrons libres dans le plasma a pour effet de produire un champ électrique et conduit à un élargissement des niveaux d'un ion : c'est l'effet Stark. A titre d'exemple pour une densité de plasma d'uranium de 0.01 g/cm^3 et une température de 70 eV, l'effet Stark induit une largeur de 3 meV pour une raie voisine de 76.8 eV, par exemple la transtion $6p_{1/2} \rightarrow 5d_{5/2}$. Cependant cet élargissement est négligeable devant l'élargissement du aux collisions électroniques qui, dans les mêmes conditions, est de l'ordre de 1 eV. Ainsi cet élargissement des raies va permettre d'obtenir une condition de résonance plus favorable à l'effet NEET.

Calculs du taux de transitions NEET dans un plasma d'uranium

Les calculs du taux d'excitation NEET dans un plasma nécessitent une description fine de la structure atomique. Plusieurs voies sont alors possibles. La première consiste à traiter

le plus correctement possible les configurations électroniques qui participent à l'effet NEET. Cela nécessite une approche dans laquelle on traite le mélange de configurations, par exemple de type MCDF⁶⁶ (Multi Configuration Dirac Fock). Un calcul de ce type est présenté référence¹². Les auteurs déterminent les distributions des charges ioniques, $P^{q,i}(n_e, T)$, pour une température et une densité données, à l'aide du modèle collisionnel-radiatif. Le taux de transition NEET est alors calculé par la formule :

$$\lambda_{\text{NEET}} = \sum_q \sum_{\text{if}} P^{q,i}(n_e, T) \lambda_A^{q,\text{if}}(n_e, T) P_{\text{NEET}}^{q,i} \quad (6.17)$$

$\lambda_A^{q,\text{if}}$ est le taux de transition électronique des transitions participant à l'effet NEET. $P_{\text{NEET}}^{q,i}$ est donnée par l'équation (6.1).

Compte tenu des incertitudes sur le calcul de l'énergie des transitions, le taux NEET a été estimé à respectivement, $10^{-9} \text{ s}^{-1} < \lambda_{\text{NEET}} < 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ et $10^{-6} \text{ s}^{-1} < \lambda_{\text{NEET}} < 10^{-1} \text{ s}^{-1}$ pour $T = 20 \text{ eV}$ et 100 eV . Toutefois cette approche ne peut traiter la multitude de configurations intervenant dans un plasma et la nature statistique du spectre des transitions qui en résulte, n'est pas prise en compte. Le traitement du très grand nombre de configurations ne peut être fait qu'au prix d'une simplification du modèle de physique atomique.

Pour tenir compte de la nature statistique du spectre des transitions dans les plasmas un des modèles de structure électronique utilisé est celui de l'atome moyen proposé par B.Rozsnyai⁶⁷.

Un calcul de ce type a été effectué par Pierre Dallot et est présenté référence⁶⁸. Dans ce schéma on considère que les configurations d'un seul atome moyen représentent en moyenne les différentes configurations des atomes présents dans le plasma. Cet atome moyen est placé dans une sphère de volume $V = M/(N_0 d)$ avec M la masse molaire de l'élément, N_0 le nombre d'Avogadro et d la densité.

Les fonctions d'ondes relativistes des différentes orbitales, le potentiel chimique et le potentiel électronique moyen sont alors calculés de façon cohérente à la température T et à la densité de matière d . L'approximation de Thomas-Fermi est utilisée pour décrire le continuum et le calcul suppose l'équilibre thermodynamique. Les fonctions d'onde électronique sont utilisées pour construire les états électroniques sous forme de déterminant de Slater. Les déterminants sont alors regroupés par configuration, une configuration étant caractérisée par un ensemble de nombres non entiers d'occupation de couches de l'atome moyen.

$$N_k^* = \frac{f(\epsilon_k)}{1 + \frac{(\epsilon_k - \mu)}{kT}} \quad (6.18)$$

Où ϵ_k et μ sont respectivement l'énergie d'un électron sur la couche k et le potentiel chimique.

Une configuration réelle est alors définie par un ensemble de nombres entiers, $C_k = \{N_1, \dots, N_k, \dots\}$. Elle possède une dégénérescence égale à $\prod_k C_{\Omega_k}^{N_k}$ où $\Omega_k = 2j_k + 1$ est la dégénérescence de la couche k . L'énergie moyenne d'une configuration est alors prise comme la moyenne des énergies des déterminants de Slater qui forment cette configuration :

$$E(C) = \sum_k U_k N_k + \frac{1}{2} \sum_{kk'} V_{kk'} N_k (N_{k'} - \delta_{kk'})$$

U_k contient l'énergie cinétique et l'énergie d'interaction noyau électron, moyennée dans la couche k .

$V_{kk'}$ contient l'interaction coulombienne directe et d'échange moyenne entre un électron de la couche k et un électron de la couche k' .

Considérons une transition NEET $|\Psi\alpha\rangle \rightarrow |\Phi\beta\rangle$ où Ψ, Φ sont les fonctions d'ondes de tous les électrons (c'est-à-dire les déterminants de Slater) et β, α sont les états nucléaires respectivement excité et fondamental. La probabilité de cette transition par unité de temps est donnée par la règle d'or de Fermi :

$$\lambda_{\Psi\Phi} = \frac{2\pi}{h} \overline{|\langle \Phi\beta | W | \Psi\alpha \rangle|^2} \rho(E_\Phi + E_\Psi = E_\alpha + E_\beta)$$

La densité d'états $\rho(E_\Phi + E_\Psi = E_\alpha + E_\beta)$ est obtenue à partir des différentes causes d'élargissement (naturel, collisionnel, effet Stark).

Le taux de transition NEET est alors obtenu en sommant la dernière expression sur les états finals avec un poids égal à un, et sur les états initiaux en utilisant la statistique de Boltzmann. L'approximation qui est faite consiste alors à sommer sur les configurations plutôt que sur les états. Dans la formule suivante, le taux NEET total est exprimé comme la valeur prise à l'énergie $E_\beta - E_\alpha$ par la fonction p de l'énergie de la transition :

$$\lambda = p(E_\beta - E_\alpha)$$

$$p(h\nu) = \frac{2\pi}{hZ} \sum_{if} \overline{|\langle f\beta | W | i\alpha \rangle|^2} \sum_{\{N_k\}} \frac{N_i (\Omega_f - N_f)}{\Omega_i \Omega_f} \prod_{k=1}^N C_{\Omega_k}^{N_k} e^{-\beta \left(\sum_k \varepsilon_k N_k + \frac{1}{2} \sum_{kk'} V_{kk'} N_k (N_{k'} - \delta_{kk'}) \right)} f(h\nu - h\nu(\{N_k\}))$$

Dans cette expression Z est le facteur de normalisation de la probabilité, $h\nu(\{N_k\})$ est l'énergie libérée par la transition électronique, et la fonction f est la forme de raie déduite des causes d'élargissement continu. Pour une transition E3, cas de ^{235}U , l'élément de matrice est donné par⁶⁸ :

$$\overline{|\langle f\beta | W | i\alpha \rangle|^2} = \frac{4\pi}{14} \left(\frac{c^2 R_0^3}{a_0^4} \right) (2l_i + 1)(2l_f + 1) \begin{pmatrix} l_f & 3 & l_i \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} 3 & l_f & l_i \\ 1 & j_i & j_f \end{Bmatrix}^2$$

$$|\langle n_f l_f j_f | r^{-4} | n_i l_i j_i \rangle|^2 |\langle i\alpha || E3 || f\beta \rangle|^2$$

La variation en r^{-4} de l'élément de matrice atomique, ($r^{-(l+1)}$, avec l la multipolarité de la transition) fait que le calcul va faire dépendre fortement des valeurs de la fonction d'onde au

voisinage du noyau. Ceci rend un calcul relativiste nécessaire. L'élément de matrice nucléaire peut être facilement déduit du coefficient de conversion interne du niveau, calculé, et de la durée de vie de l'état. Il vaut.

$$|\langle \alpha \| E3 \| \beta \rangle|^2 \approx 2.5 \cdot 10^{-4}$$

Les taux de transition NEET pour l'excitation du premier niveau de l' ^{235}U , obtenus pour différentes températures et densités sont donnés sur la figure 17. L'énergie de la transition nucléaire est connue à 0.5 eV près. Or le spectre des transitions électroniques présente parfois des fluctuations qui peuvent être d'un ordre de grandeur sur cet intervalle. Même si on admet que le calcul des transitions électroniques est exact, on ne peut calculer le taux NEET qu'à l'incertitude de la fluctuation du spectre près. Ainsi les valeurs du taux NEET présentées sont moyennées sur l'intervalle d'incertitude [76.3, 77.3].

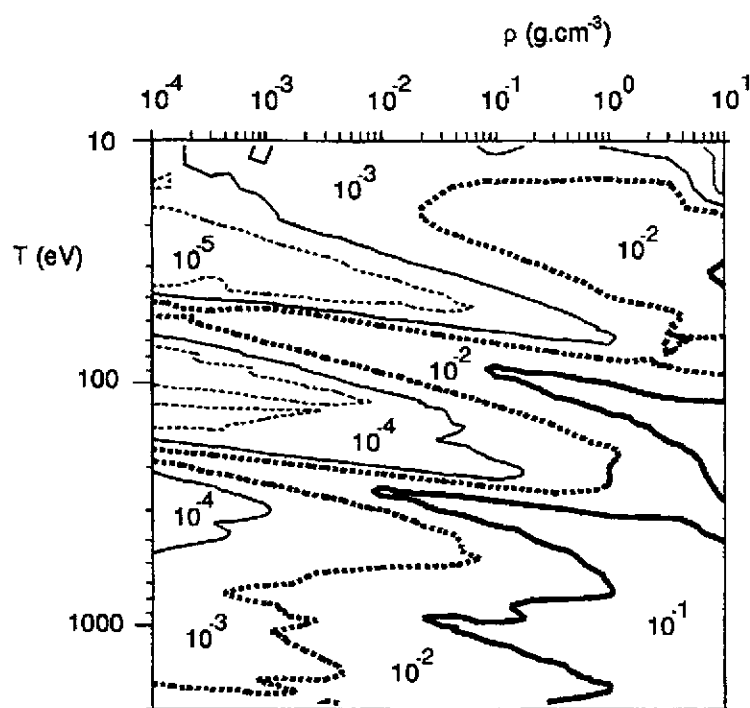


Figure 17

Courbes de niveaux du taux de transition λ_{NEET} de l' ^{235}U

Sur ce plan, figure 17, nous pouvons localiser les zones à l'intérieur desquelles des taux élevés sont atteints. Comme le taux dépend moins de la densité que de la température, on détermine trois domaines températures intéressantes. La première entre 60 et 80 eV correspondant au passage de la transition ($6d_{5/2} \rightarrow 6p_{1/2}$) à la résonance. La seconde entre 200 et 300 eV correspond à la transition ($6d_{5/2} \rightarrow 6p_{3/2}$). Enfin la troisième, à une plus basse température, 15 eV, correspond à la transition ($6d_{1/2} \rightarrow 5d_{5/2}$).

Nous pouvons comparer les valeurs calculées aux résultats expérimentaux présentés plus haut. Dans la première expérience⁵⁷ le taux NEET obtenu était de 2 s^{-1} pour une densité et une température estimées respectivement à environ 10^{-4} g/cm^3 et 100 eV. Cette valeur est bien supérieure aux taux NEET évalués et qui correspond à quelques 10^{-4} s^{-1} . Le calcul est en

accord, cette fois, avec l'expérience de l'équipe russe⁵⁸ qui dans les mêmes conditions trouve un taux inférieur à 10^{-3} s^{-1} . Dans le cas du plasma formé par un faisceau d'électrons⁵⁸ la température obtenue était de 20 eV pour une densité matière de $1.6 \cdot 10^{-3} \text{ g/cm}^3$. Si l'on soustrait du taux de transition obtenu, le taux d'excitation par diffusion inélastique d'électrons, on obtient un taux NEET de l'ordre de quelques 10^{-5} s^{-1} . Ce taux est à comparer à la valeur de $3.8 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ calculée. Il faut remarquer que dans cette zone le taux d'excitation varie très violemment avec la température puisqu'à 25 eV on obtient $3.2 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$.

Ces calculs montrent une très grande sensibilité du taux NEET à la température du plasma. Trois zones sont particulièrement favorables à l'effet NEET. Elles correspondent au passage, dans la fenêtre d'énergie que le noyau peut accepter, des transitions électroniques ($6d_{5/2} \rightarrow 6p_{1/2}$), ($6d_{5/2} \rightarrow 6p_{3/2}$), ($6d_{1/2} \rightarrow 5d_{5/2}$). Pour des densités supérieures à 10^{-2} g/cm^3 et pour certaines température du plasma, le taux de transition NEET est au moins égal à 10^{-1} s^{-1} . Cette valeur est 10^3 fois plus grande que le taux de décroissance de l'isomère !

Dans les plasmas formés par laser, les photons du laser peuvent réduire le désaccord entre la transition nucléaire et les différentes transitions atomiques. Il s'agit là d'une variante de l'effet NEET⁶⁹.

Cette valeur du taux NEET doit être comparée aux taux de transitions des différents mécanismes pouvant mener à l'excitation de l'isomère. Rappelons que les processus possibles sont : la photoexcitation, la diffusion inélastique d'électrons et la capture d'électrons qui est le processus inverse de la conversion interne appelé IIEC (Inverse Internal Electron Conversion) ou NEEC (Nuclear Excitation by Electron Capture). Une estimation de ces mécanismes a été faite référence (12). La largeur radiative du niveau isomérique de ^{235}U est extrêmement faible. En supposant une distribution des électrons maxwellienne à la température de 100 eV, les auteurs obtiennent un taux de transition pour la photoexcitation inférieur à 10^{-17} s^{-1} . A cette même température, le taux de transition pour la diffusion inélastique a été estimé à environ 10^{-16} s^{-1} . Dans le cas du NEEC, les auteurs estiment le taux de transition à une valeur inférieure à 10^{-10} s^{-1} pour des températures supérieure à 10 eV.

Nous voyons que dans un plasma d'uranium, pour des températures de quelques centaines d'eV, le processus NEET est le processus dominant. Ainsi l'observation de l'excitation du premier niveau de ^{235}U dans un plasma serait une mise en évidence de l'effet NEET.

Afin de dimensionner une expérience, il faut pouvoir estimer le nombre d'isomères créés en fonction de l'intensité laser. Les taux NEET présentés sont calculés à une température et une densité données. Or dans une interaction directe entre le laser et un solide, le plasma formé va parcourir un chemin thermodynamique dans le plan densité température. Il faut alors intégrer le nombre d'isomères créés tout le long du parcours thermodynamique.

Hydrodynamique : cas d'un plasma d' ^{235}U

Un calcul hydrodynamique complet est nécessaire si l'on veut optimiser au mieux les conditions expérimentales dans une expérience laser.

Les calculs présentés ici ont été effectués à l'aide du code CHIVAS⁷⁰. Il s'agit d'un code hydrodynamique lagrangien, monodimensionnel, en géométrie plane, cylindrique ou sphérique. La cible est divisé en mailles. L'absorption laser se fait par Bremsstrahlung inverse le long du parcours de l'onde laser et par absorption résonnante à la densité critique. Cette

dernière est modélisée par un dépôt d'énergie local d'une fraction ajustable de l'énergie laser disponible, ici 10 %. Le code CHIVAS permet de prendre en compte les effets de la dimension latérale de la tache focale laser. Ceci permet de modéliser les effets de la détente latérale du plasma et de la diffusion latérale de la chaleur vers la partie de la cible non irradiée. La physique atomique HETL (Hors Equilibre Thermodynamique Locale), présente dans le code, est de type atome moyen hydrogénique écranté. Cela signifie que pour chaque maille du calcul un seul degré d'ionisation existe.

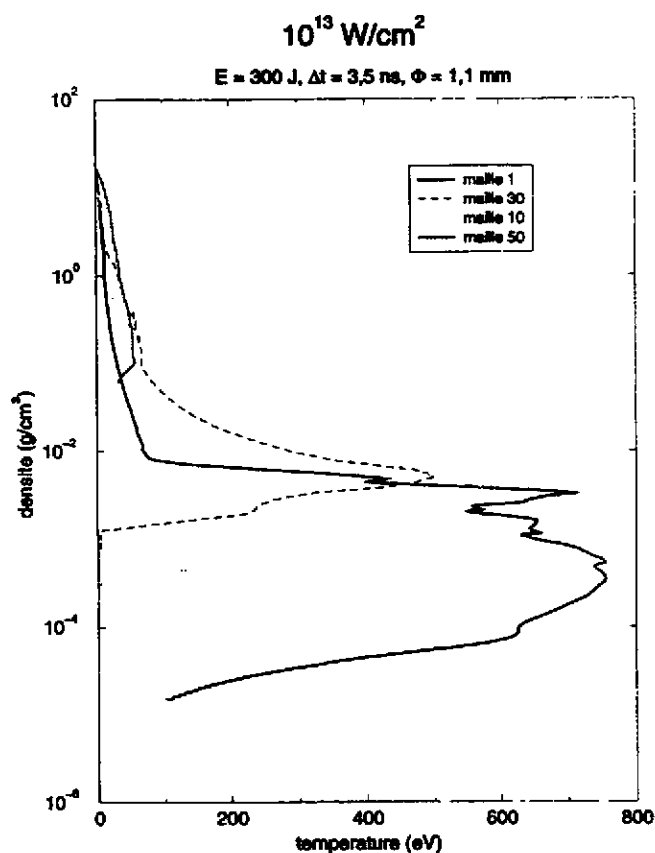


Figure 18

Calcul hydrodynamique pour un plasma d'uranium à 10^{13} W/cm^2 .

La figure 18 présente un calcul hydrodynamique effectué à 10^{13} W/cm^2 . L'énergie laser est de 300 Joules et la durée de l'impulsion de 3.5 ns pour une tache focale de 1.1 mm de diamètre. Cette figure représente le chemin thermodynamique de différentes mailles. La maille 1 est la première maille à se détendre, sa densité toujours très faible fait qu'elle est presque toujours à l'équilibre coronal. Le calcul montre que cette maille atteint des températures très élevées ($T_e^{\text{max}} \approx 750 \text{ eV}$). A l'opposé la maille 50 est faiblement détendue et sa température reste modérée par rapport aux autres mailles. Cette maille est toujours à des densités inférieures à la densité critique et n'est pas chauffée directement par le laser mais par conduction essentiellement électronique. La maille 30 est intermédiaire entre ces deux extrêmes.

Afin d'estimer le nombre d'isomères produits dans ces conditions, un couplage entre le code CHIVAS et les taux d'excitation NEET a été fait⁷¹. Toutefois les taux NEET calculés le sont à l'ETL et les effets HETL sont de nature multiple dans un plasma en détente. Dans ce cas les populations moyennes des couches sont affectées. Pour corriger cela les taux sont alors modifiés en les multipliant par le rapport :

$$\frac{n_i^{HETL} [\Omega_f - n_f^{HETL}]}{n_i^{ETL} [\Omega_f - n_f^{ETL}]} \quad \Omega_f \text{ étant la dégénérescence de la couche } f$$

où i correspond à la couche $n=6$, et f à $n=5$ ou $n=6$, selon la transition. Or on constate que lorsque ce rapport est très différent de un, la couche finale reste toujours très peu peuplée. Cette approximation, très grossière, se ramène donc à calculer le rapport des populations de la couche initiale dans le cas ETL et HETL. Ces deux informations sont calculées par le code de physique atomique utilisée par CHIVAS et donc disponibles à chaque itération.

Le tableau suivant présente les résultats⁷² obtenus pour différents éclairagements : 10^{11} , 10^{12} , 10^{13} , 10^{14} W/cm^2 . L'impulsion est de forme trapézoïdale et de durée 3.5 ns à mi hauteur. La surface éclairée par le laser est dans tous les cas de diamètre 1.1 mm. La première colonne représente l'intensité laser, la seconde colonne la condition sur la température lors du calcul du nombre d'isomères créés, la troisième colonne le nombre d'isomères créés dans des conditions proches de l'ETL (c'est-à-dire si $\frac{n_i^{HETL} - n_i^{ETL}}{n_i^{HETL}} \leq 0.1$) et la dernière colonne représente le nombre total d'isomères créés. Les deux dernières colonnes ne doivent pas être très différentes sinon le nombre total d'isomères n'a plus de sens.

TABLEAU 7

	Température (eV)	Nombre d'isomères créés à ETL	• Nombre d'isomères
10^{11} W/cm^2 Nombre d' ^{235}U : $8.2 \cdot 10^{15}$	> 10 eV	$1.96 \cdot 10^4$	$2.04 \cdot 10^4$
	> 20 eV	$3.01 \cdot 10^3$	$3.43 \cdot 10^3$
	> 30 eV	4	8
10^{12} W/cm^2 Nombre d' ^{235}U : $2.4 \cdot 10^{16}$	> 10 eV	$3.4 \cdot 10^5$	$3.5 \cdot 10^5$
	> 20 eV	$9.7 \cdot 10^4$	$1.03 \cdot 10^5$
	> 30 eV	$8.4 \cdot 10^3$	$1.43 \cdot 10^4$
10^{13} W/cm^2 Nombre d' ^{235}U : $2.7 \cdot 10^{16}$	> 10 eV	$1.91 \cdot 10^6$	$1.96 \cdot 10^6$
	> 20 eV	$1.14 \cdot 10^6$	$1.16 \cdot 10^6$
	> 30 eV	$1.72 \cdot 10^5$	$1.94 \cdot 10^5$
10^{14} W/cm^2 Nombre d' ^{235}U : $4.9 \cdot 10^{16}$	> 10 eV	$9.7 \cdot 10^6$	$1.0 \cdot 10^7$
	> 20 eV	$7.8 \cdot 10^6$	$8.1 \cdot 10^6$
	> 30 eV	$7.1 \cdot 10^6$	$7.4 \cdot 10^6$

Discussion des résultats

Nous observons sur le tableau ci dessus que le nombre d'isomères créés croît en fonction de l'intensité laser. Ceci traduit tout d'abord l'augmentation du volume du plasma, visible sur le nombre d' ^{235}U indiqué colonne 1. Cependant cet effet est faible et ne peut expliquer les

différences observées. Celles-ci sont dues à l'augmentation de la température. En effet, lorsque l'intensité laser augmente, la température croît et l'on atteint des régions plus favorables à l'effet NEET.

On peut voir sur le tableau que le nombre d'isomères créés dans des conditions proches de l'ETL est toujours très voisin du nombre total d'isomères produits. Ainsi la plus grande partie des isomères sont créés à l'ETL. Comme nous l'avons vu précédemment, une telle région est située derrière la zone chauffée directement par l'onde laser, dans une région de relativement haute densité, chauffée par conduction..

La dernière remarque que l'on peut faire concerne la variation du nombre d'isomères en fonction de la température. Nous voyons que plus l'intensité laser augmente plus les isomères sont créés à haute température. A 10^{14} W/cm^2 , la zone à l'ETL atteint des températures de l'ordre de 70 eV où la transition $6d_{5/2} \rightarrow 6p_{1/2}$ est résonante.

Ces calculs montrent que le concept d'excitation du noyau dans un plasma, par modification de l'environnement électronique, est possible.

Des expériences sur ^{235}U sont en cours de réalisation dans différents laboratoires : au Centre d'Etude de Limeil-Valenton (CEA), auprès du laser de puissance PHEBUS, et au Centre d'Etude Nucléaire de Bordeaux Gradignan (CENBG), à l'aide d'un laser YaG, pulsé à 10 Hertz.

Dans ces deux expériences une onde laser de $1,06 \mu\text{m}$ de longueur d'onde vient frapper une cible d'uranium enrichi à 93 % en ^{235}U , avec une incidence de 45 degrés. Un collecteur situé en face de la cible recueille le plasma. Le collecteur est alors présenté devant un détecteur d'électrons de faible énergie. C'est par la mesure de ces électrons, ou plus exactement par la mesure de leur distribution en temps, qu'il est possible de signer la formation de l'état isomérique. Dans l'expérience PHEBUS⁷³, les intensités laser atteintes étaient de 10^{12} W/cm^2 et 10^{13} W/cm^2 pour une énergie de 300 Joules et des durées d'impulsion de 3.5 ns. Les premiers tirs, préliminaires, avec le laser YAG ont été faits à quelques 10^{11} W/cm^2 pour une énergie laser de 300 mJ.

Dans ces deux expériences, le niveau de bruit ne permet pas de mettre en évidence l'excitation du niveau isomérique. Les origines du bruit proviennent de la radioactivité alpha et d'une émission électronique appelée émission exo-électronique. Cette dernière a une origine mal comprise et est particulièrement gênante car elle se manifeste par l'émission d'électrons de faibles énergies ayant une composante en temps de quelques minutes à plusieurs heures. Cette émission d'exo électrons pourrait être responsable du signal observé par l'équipe Japonaise⁵⁷. Récemment des progrès notables ont été réalisés, au CENBG⁷⁴, en irradiant à faible puissance, la surface du collecteur avant les tirs laser. Des expériences, prévues avec le laser YAG, et avec des sources laser permettent des éclaircissements supérieurs à 10^{14} W/cm^2 , sont en cours de préparation.

VII - CONCLUSION

Nous avons montré que dans les systèmes atomiques très ionisés les modes de désexcitation du noyau peuvent se trouver très perturbés. Certaines voies de désexcitation du noyau, interdites ou peu probables dans les atomes neutres, peuvent devenir prépondérantes dans des ions très chargés. C'est le cas de la décroissance β liée ou de la conversion interne entre des états atomiques liés. Il en résulte que pour certains systèmes, la période de

décroissance d'un état nucléaire, peut varier dans de très grandes proportions en fonction de l'état de charge de l'ion et de la configuration des électrons liés. Pour un isotope donné dans deux états de charges voisins, $T_{1/2}$ peut avoir une valeur plus grande ou plus petite que celle dans l'atome neutre comme nous l'avons montré pour le premier état excité du ^{125}Te entre les états de charge $Q = 44$ et $Q = 47$. La prise en considération des perturbations apportées au couplage entre le noyau et le cortège électronique est nécessaire pour décrire l'évolution des systèmes dans lesquels la matière est principalement sous forme de plasmas (milieu stellaire, plasmas créés par lasers).

Les modifications de l'environnement atomique peuvent également influencer sur les taux d'excitation nucléaire. Nous avons présenté une revue des différentes expériences entreprises pour mettre en évidence le phénomène de NEET. Nous avons particulièrement développé les possibilités offertes par l'excitation du niveau à 76 eV dans ^{235}U . D'autres candidats sont possibles, tels que le ^{191}Hg , ^{205}Pb ou le ^{181}Ta . Cependant dans ces noyaux la transition intéressante est de quelques keV et il faut alors favoriser la distribution hors équilibre des électrons pour espérer exciter ces états. Ceci peut être fait auprès d'installation de très forte puissance comme les sources femtoseconde, Petawatts. La population d'états isomériques nucléaires à l'aide de lasers, outre son intérêt fondamental pour montrer l'existence du NEET, couplée à des manipulations de la période de décroissance en fonction de l'état de charge, peut avoir des développements intéressants dans des applications de stockage de l'énergie ou le développement de lasers gamma.

REFERENCES

- [1] L. Armstrong dans Topics in Current Physics, Vol. 5, page 69, Structure and collisions in ions and atoms, édité par I.A. Sellin, Springer-Verlag (1978)
- [2] H.A. Bethe et E. Salpeter, Quantum mechanics of one or two electrons atoms, Springer-Verlag, page 250
- [3] S.I. Salem and L.E. Lee, Atomic Data and Nuclear Data Tables 18, 233 (1976)
- [4] W.E. Meyerhof and J.F. Chemin, Advances In Atomic And Molecular Physics, 20, 173, (1984)
- [5] R. Anholt, Phys. Lett. B 88B 262 (1979)
- [6] L. Landau et E. Lifchitz, Mécanique Quantique 2^{ème} édition, édition MIR, Moscou (1967)
- [7] J.M. Hansteen, O.M. Johansen, L. Kocbach, Atomic Data and Nucl. Data tables 15, 305, (1975)
- [8] W.E. Meyerhof and K. Taulberg, Ann. Rev. Nucl. Sci. 27, 279, (1979)
- [9] R. Anholt, Atomic Inner-Shell Processes, édité par B. Crasemann, Plenum Press, New York (1985)
- [10] Dr. Belkic, R. Gayet, A. Salin, Phys. Rep. 56, 279 (1979)
- [11] J.P. Rozet, A. Chetoui, P. Piquemal, D. Vernhet, K. Wohrer, C. Stephan, L. Tassan-Got, J. Phys. B 22, 33 (1989)
- [12] M. Harston and J.F. Chemin, Phys. Rev. C59, 2462 (1999)
- [13] K. Takahashi and K. Yokoi, Atomic and Nucl. Data tables 36, 375 (1987)
- [14] K. Takahashi and K. Yokoi, Nucl. Phys. A404, 578 (1983)
- [15] J.N. Bahcall, Astrophys. J. 139, 318 (1964)
- [16] H. Irnich et al, Phys. Rev. Lett. 75, 4182 (1995)
- [17] D'après F. Bosch – GSI – Nachrichten (1988)
- [18] R. Daudel, M. Jean, M. Lecoïn, J. de Physique et le radium 8, 238 (1947)
- [19] M. Jung et al, Phys. Rev. Lett. 69, 2164 (1992)
- [20] H.C. Pauli, K. Alder, R.M. Steffen – “The theory of Internal Conversion dans The Electromagnetic Interaction In Nuclear Spectroscopy”, page 341, édité par W. O. Hamilton, North Holland (1975)
- [21] G.T. Ewan and R.L. Graham, “Internal Conversion Studies at very high resolution” dans α , β and γ ray spectroscopy, page 951, édité par K. Siegbahn – North Holland
- [22] M. Harston, Communication privée
- [23] M. Ulrickson et al, Phys. Rev. C9, 326 (1974)
- [24] W.E. Phillips et al, Phys. Rev. Lett. 62, 1025 (1989) – Phys. Rev. A 47, 3682 (1993)
- [25] Chandler et al, Phys. Rev. C54, R.C. 2924 (1997)
- [26] V. Brabec et al, Z. Phys. A 306, 347 (1982)
- [27] F. Attallah et al, Phys. Rev. Lett. 75, 1715 (1995) ; Phys. Rev. C55, 16665 (1997)
- [28] F. Attallah, Thèse Université Bordeaux 1 (1994)
- [29] F.F. Karpeshin et al, Phys. Rev. C 53, 1640 (1996)
- [30] M.R. Harston, Communication privée
- [31] T. Carreyre et al, Thèse Université de Bordeaux 1 (2000), à paraître Phys. Rev. C
- [32] M.R. Harston et al, à paraître
- [33] V.I. Goldanskii et al, Sov. J. Nucl. Phys. 33, 2 (1981)
- [34] M. Morita, Prog. Theor. Phys. 49 (1973) 1574

- [35] K. Pisk et al, Nucl. Phys. A504 ,103 (1989)
- [36] A. Ljubicic et al, Phys. Lett B 272, 1 (1991)
- [37] H.Yukun et al, High Energy, Phys. Nucl. Phys. 16, 321, (1991)
- [38] Y. Ho et al, Phys. Rev. C44, 1910 (1991)
- [39] Y. Ho et al, Phys. Rev. C48, 2277 (1993)
- [40] D.P. Grechukhin and A.A. Soldatov, Institute of Atomic Energy report IAE-2706 (Moscow,1976)
- [41] E.V. Tkalya, Nucl., Phys. A539, 209 (1992)
- [42] C. Cohen-Tannoudji, F.Laloé,B.Diu, Mécanique Quantique, Enseignement des Sciences 1977
- [43] E.V., Tkalya, Sov. Phys. JETP 75(2) (1992) 200
- [44] Nucl. Data Sheets 34 (1981) 101
- [45] H. Fujioka, K. Ura, A. Shinoara, T. Saito and K. Otozai, Z. Phys. A315 (1984) 121
- [46] Nucl. Data Sheets 49 (1986) 181
- [47] T. Saito et al, Phys.Lett. 92B (1980) 293
- [48] Nucl. Data Sheets 59 (1990) 869
- [49] K. Otozai et al, Progr. Theor. Phys. 50, 1771 (1973)
- [50] K. Otozai et al, Nucl. Phys. A297, 97, (1978)
- [51] T. Saito et al. J. Inorg, Nucl. Chem. 43, 1963, (1981)
- [52] L. Lakosi et al. Nucl. Sc. Re. Conf. (1987)
- [53] A. Shinoara et al, Nucl. Phys. A472, 151, (1987)
- [54] L. Lakosi et al, Phys. Rev. C52,1510 (1995)
- [55] T. Sato et al, Prog. Theor. Phys. 89 (1993)
- [56] Band and Trzhaskovskaya, Atomic and Nuclear Data Tables, (55):43,1993
- [57] Y. Izawa et al, Phys. Lett. 88B,59 (1979)
- [58] R.V. Arutyunyan et al, Sov. J. Nucl. Phys.53, 23 (1991)
- [60] J.A. Bounnds and P. Dyer, Phys.Rev. C46, 852 (1992)
- [61] P. Agostini et al, Phys. Rev. Lett. 42, 1127 (1979)
- [62] R. Dautray et J.P. Watteau, La fusion thermonucléaire inertielle par laser Partie 1, Volume 1, Collection du Commissariat à l'énergie atomique
- [63] D. Colombant et al, J. Appl. Phys. Vol 44, 3524 (1973)
- [64] R. Dautray et J.P. Watteau, La fusion thermonucléaire inertielle par laser Partie 1, Volume 2, Collection du Commissariat à l'énergie atomique
- [65] Y. Zeldovich et al, Physics of Shocks Waves and High Temperature Hydrodynamic Phenomena (Academic Press NY, 1966)
- [66] J. Descaux, Comp. Phys. Comm. 9, 31-45 (1975)
- [67] B.F. Rozsnyai, Phys. Rev. A, 5(3) 1137 (1972)
- [68] P. Dallot et V. Méot, "Calcul du taux NEET dans un plasma"/DIF/DPTA/SMC DO/98 1998
- [69] S. Typel and C. Leclercq-William, Phys. Rev. A53, 2547 (1996)
- [70] A. Decoster , L. Bonnet et S. Jacquemot, Communication privée
- [71] Th.Jalinaud, Communication privée
- [72] C. Camus,Thèse Université de Bordeaux 1, à paraître
- [73] V. Méot et al, à paraître
- [74] J. F. Chemin, Communication privée